

SGSreco – Radiologische Charakterisierung von Abfallfässern durch Segmentierte γ -Scan Messungen

Thomas Heinrich Krings

Forschungszentrum Jülich GmbH
Institut für Energie- und Klimaforschung
Nukleare Entsorgung und Reaktorsicherheit (IEK-6)

SGSreco – Radiologische Charakterisierung von Abfallfässern durch Segmentierte γ -Scan Messungen

Thomas Heinrich Krings

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment

Band / Volume 208

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-89336-945-4

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek.
Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der
Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte Bibliografische Daten
sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

Herausgeber
und Vertrieb: Forschungszentrum Jülich GmbH
Zentralbibliothek, Verlag
52425 Jülich
Tel.: +49 2461 61-5368
Fax: +49 2461 61-6103
E-Mail: zb-publikation@fz-juelich.de
www.fz-juelich.de/zb

Umschlaggestaltung: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Druck: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Copyright: Forschungszentrum Jülich 2014

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment, Band / Volume 208

D 82 (Diss., RWTH Aachen University, 2014)

ISSN 1866-1793
ISBN 978-3-89336-945-4

Vollständig frei verfügbar im Internet auf dem Jülicher Open Access Server (JUWEL)
unter www.fz-juelich.de/zb/juwel

Alle Rechte vorbehalten. Kein Teil des Werkes darf in irgendeiner Form (Druck, Fotokopie oder
in einem anderen Verfahren) ohne schriftliche Genehmigung des Verlages reproduziert oder
unter Verwendung elektronischer Systeme verarbeitet, vervielfältigt oder verbreitet werden.

SGSrec

non-destructive radiological characterization of waste drums



Kurzzusammenfassung

VERNACHLÄSSIGBAR WÄRMEENTWICKELNDE RADIOAKTIVE ABFÄLLE sollen voraussichtlich ab dem Jahr 2021 im Endlager Schacht Konrad bei Salzgitter in einer Tiefe von 800 m bis 1300 m eingelagert werden. Die Einlagerung von radioaktiven Abfällen in das Endlager ist dabei an die Einhaltung der nationalen Endlagerungsbedingungen geknüpft. In den Endlagerungsbedingungen sind unter anderem radiologische Anforderung an die Abfälle festgehalten. Zur Sicherstellung der Einhaltung der Endlagerungsbedingungen werden Messungen zur radiologischen Charakterisierung von Abfallfässern durchgeführt. Dazu haben sich weltweit zerstörungsfreie segmentierte γ -Scan Messverfahren etabliert.

BEI SEGMENTIERTEN γ -SCAN MESSVERFAHREN werden im Vorhinein definierte Teilvolumina eines Abfallfasses unabhängig voneinander mit einem kollimierten Detektionssystem γ -spektrometrisch vermessen. In jedem der so aufgenommenen γ -Spektren werden Radionuklide anhand ihrer charakteristischen γ -Linien identifiziert. Anschließend werden für die charakteristischen γ -Linien der identifizierten Radionuklide zweidimensionale Zählratenverteilungen abhängig von der Position der Teilvolumina bestimmt. Für die Berechnung der radionuklidspezifischen Aktivitäten wird nach heutigem Stand gefordert, dass sowohl die Radionuklide als auch die Abfallmatrix homogen im gesamten Abfallfass verteilt sind. Unter dieser Annahme kann durch ein einfaches analytisches Modell anhand der mittleren gemessenen Zählrate einer γ -Linie in allen Teilvolumina die Aktivität des zugehörigen Radionuklids bestimmt werden. Diesen Anforderungen genügen allerdings nicht mehr als 25 % aller Abfallfässer. Bei allen anderen Abfallfässern sind daher Fehleinschätzungen der radionuklidspezifischen Aktivitäten um mehrere Größenordnungen zu erwarten.

MIT SGSRECO wird in dieser Arbeit ein Analyse-Framework vorgestellt, dass die Genauigkeit und die Verlässlichkeit der radionuklidspezifischen Aktivitätsrekonstruktion bei homogenen und auch bei räumlich konzentrierten Radionuklidinventaren (Punktquellen) sicherstellt. SGSreco verfolgt dazu einen inversen Ansatz. Im Rahmen einer First-Guess Rekonstruktion werden Punktquellen durch Peaks in den Zählratenverteilungen identifiziert. Mit diesen Informationen wird eine Likelihood-Anpassung eines physikalisch motivierten geometrischen Modells an die gemessenen Zählratenverteilungen durchgeführt und so die Positionen und Aktivitäten der Punktquellen sowie die Aktivität des homogenen Radionuklidinventars bestimmt. Erstmals können mit SGSreco auch im Vorhinein unbekannte Parameter, wie die Matrixdichte und die Dicke von Abschirmbehältern, bestimmt und statistische sowie systematische Unsicherheiten sinnvoll evaluiert werden. Die Rekonstruktion mit SGSreco wird durch Simulationsstudien für einen Matrixdichtebereich von $0,5 \text{ g cm}^{-3}$ bis $2,3 \text{ g cm}^{-3}$ und durch Messungen an einem Referenzfass sowie an einem Testfassabschnitt mit den Schlüsselnukliden ^{60}Co und ^{137}Cs bewertet. Dabei wird die Leistungsfähigkeit von SGSreco bei rein homogenen Radionuklidinventaren, bei Ensembles mit bis zu fünf Punktquellen, bei Punktquellen in unbekannten Abfallmatrizes oder Abschirmbehältern und bei räumlich ausgedehnten Quellen untersucht. Bei rein homogenen Inventaren kann die Abweichung in der Aktivitätsrekonstruktion beispielsweise von rund 30 % durch die konventionelle Methode auf nicht mehr als 6 % verbessert werden. Auch bei der Rekonstruktion von Ensembles mit bis zu fünf Punktquellen kann die Gesamtaktivität mit Abweichungen von nur rund -7% bis 14% genau bestimmt werden. In allen Fällen kann eine durchweg sehr genaue Rekonstruktion durch SGSreco festgestellt werden. Punktquellen können zudem mit einer durchschnittlichen Abweichung von nur wenigen mm lokalisiert werden. Aufgrund kurzer Rechenzeit von weniger als einer Minute kann SGSreco in der Routinecharakterisierung ohne Einschränkung eingesetzt werden. Zudem ist SGSreco auch mit bereits bestehenden Messsystemen kompatibel, sodass es schnell und flexibel eingesetzt werden kann. SGSreco verbessert daher die Genauigkeit der radionuklidspezifischen Aktivitätsrekonstruktion im Vergleich zur konventionellen Methode deutlich, ermöglicht eine sinnvolle Unsicherheitsbestimmung und erlaubt die Bestimmung einer Vielzahl von vorher unzugänglichen Parametern der Matrix- und Radionuklidverteilung, welche Einfluss auf die Endlagerfähigkeit haben können.

Abstract

STARTING FROM 2021, low and intermediate level radioactive waste produced in the Federal Republic of Germany will be finally disposed at a depth from 800 m to 1300 m in the Konrad Repository, close to the city Salzgitte. A prerequisite for the final disposal of radioactive waste packages is their conformance with national acceptance criteria. These acceptance criteria include among others radiological requirements for waste packages. To ensure a conformance of waste packages with these radiological requirements, experimental techniques are applied to characterize their radionuclide inventories. For this purpose, segmented γ -scanning is used worldwide as the standard non-destructive assay for the radiological characterization of waste drums.

SEGMENTED γ -SCANNING investigates predefined parts of a waste drum independently of each other using γ -spectrometry with a collimated detection system. Radionuclides are identified by their characteristic γ -lines in each recorded γ -spectrum, and two-dimensional count rate distributions are determined depending on the positions of the investigated predefined parts. The reconstruction of radionuclide specific activities by conventional methods requires a homogeneous matrix and radionuclide distribution within the whole drum. Thus, radionuclide specific activities are estimated using an analytical model based on the average count rate of a characteristic γ -line over all investigated parts of the waste drum. However, only 25 % of all waste drums meet these requirements. It is therefore expected that the radionuclide specific activities for the majority of waste drums are miscalculated by several orders of magnitude.

IN THIS WORK, an analysis framework known as SGSreco is presented. SGSreco aims to ensure an accurate and a reliable reconstruction of radionuclide specific activities for homogeneous and spatially concentrated (point sources) radionuclide inventories. SGSreco uses an inverse approach. Within a first-guess reconstruction, point sources are identified by peaks in the associated count rate distributions. Using this information, the measured count rate distributions are fitted with a physically motivated geometric model by a likelihood minimization. Finally, the positions and activities of point sources as well as the activity of a homogeneous distribution of a radionuclide are reconstructed. For the first time, a priori unknown parameters, such as the density of the waste matrix or the thickness of absorber boxes, can be determined by SGSreco. Furthermore, SGSreco is capable of estimating reasonable statistical and systematic uncertainties. Reconstructions with SGSreco are benchmarked by simulation studies with waste matrices ranging from densities of 0.5 g cm^{-3} to 2.3 g cm^{-3} and by measurements with a reference drum and a test drum segment using the key nuclides ^{60}Co and ^{137}Cs . The performance of SGSreco is tested in terms of homogenous radionuclide inventories, ensembles of up to five point sources, single point sources in unknown waste matrices or absorber boxes, and spatially extended sources. It is shown, for example, that the activity reconstruction of homogenous radionuclide inventories is improved from deviations of around 30 % for the conventional method to deviations of no more than 6 %. The total activity of ensembles with up to five sources can be reconstructed with deviations between around -7% and 14% . Moreover, it is shown that the reconstructions with SGSreco are very accurate in all investigated cases. Point sources are localized with a precision of only a few mm. Due to computation times of less than one minute, SGSreco is applicable for the routine characterization of waste drums without limitations. Furthermore, SGSreco is compatible with existing γ -scanning hardware, making its implementation quick and flexible. In summary, SGSreco significantly improves the accuracy and reliability of the radionuclide specific activity reconstruction, allows a reasonable determination of statistical and systematic uncertainties, and enables the reconstruction of previously inaccessible parameters of matrix and radionuclide distribution, which may have a direct impact on the acceptance of waste for final disposal.

Inhaltsverzeichnis

	Kurzzusammenfassung	iv
	Abstract	v
	Abkürzungsverzeichnis	xi
1	Endlagerung radioaktiver Abfälle in der Bundesrepublik Deutschland	1
1.1	Ziele der Endlagerung	2
1.2	Klassifizierung von radioaktiven Abfällen	3
1.3	Stand der Endlagerung weltweit	3
1.4	Bestand und Prognosen für konditionierte Abfälle	4
1.5	Endlagerung wärmeentwickelnder Abfälle	6
1.6	Endlagerung vernachlässigbar wärmeentwickelnder Abfälle	8
2	Radiologische Anforderung an Abfälle für das Endlager Konrad	11
2.1	Konditionierung radioaktiver Abfälle	12
2.2	Anforderungen aus den Endlagerungsbedingungen	12
2.3	Produktkontrolle von radiologischen Anforderungen	15
2.4	Notwendigkeit der experimentellen radiologischen Charakterisierung	16
3	Grundlagen der zerstörungsfreien Charakterisierung von Abfallfässern	19
3.1	Zerstörende und zerstörungsfreie Messverfahren	20
3.2	Reichweite von α - und β -Strahlung in Materie	22
3.3	Wechselwirkung von γ -Strahlung in Materie	23
3.4	Abschwächung von γ -Strahlung	28
3.5	γ -spektrometrische Messsysteme	30
3.6	Schlüsselnuklide und Skalierungsverfahren	34
4	Stand von Wissenschaft und Technik bei γ-Scan Messverfahren	37
4.1	Ziele von γ -Scan Messungen	38
4.2	Integrale γ -Scan Messungsverfahren (IGS)	38
4.3	Segmentierte γ -Scan Messverfahren (SGS)	40
4.4	Kalibrationsbedingungen und Aktivitätsrekonstruktion beim SGS	43
4.5	Korrekturmethode bei Abweichungen von den Kalibrationsbedingungen	47

5	γ-spektrometrische Simulationen mit Geant4	51
5.1	Notwendigkeit γ -spektrometrischer Simulationen	52
5.2	Monte Carlo Methoden	52
5.3	Das Geant4-Framework	53
5.4	Livermore-Modelle für Photonen und Elektronen	54
5.5	Applikation für γ -spektrometrische Simulationen	56
6	Segmentiertes γ-Scan Messungen am Forschungszentrum Jülich	59
6.1	Das SGS-Messsystem Gernod II	60
6.2	Routineeinstellungen für SGS-Messungen von konditionierten Abfällen	62
6.3	Effizienzkalibration des Detektionssystems	62
6.4	Detektorimplementation und Simulation von SGS-Messungen in Geant4	64
6.5	Quantifizierung der Einhaltung von Kalibrationsbedingungen	66
7	SGSreco	69
7.1	Motivation, Konzept und Kalibrationsbedingungen	70
7.2	Input und Datenbanken	71
7.3	Berechnung von Zählratenverteilungen	74
7.3.1	<i>Numerische Berechnung des effektiven Raumwinkels</i>	76
7.3.2	<i>Analytische Berechnung des effektiven Raumwinkels</i>	79
7.3.3	<i>Implementation in SGSreco</i>	83
7.3.4	<i>Modellvalidierung</i>	84
7.3.5	<i>Gittergröße für die numerische Berechnung des effektiven Raumwinkels</i>	89
7.4	Aktivitätsberechnung bei homogenen Radionuklidinventaren	90
7.5	Rekonstruktionsalgorithmus	91
7.6	Statistische und systematische Unsicherheiten	95
7.7	Nachweisgrenzen - Maximal nicht-detektierbare Aktivitäten	96
8	Rekonstruktion homogener Radionuklidinventare	101
8.1	Parameter- und Benchmarkstudie anhand von Simulationen	102
8.1.1	<i>Simulationssets</i>	102
8.1.2	<i>Integrationsgrenzen</i>	103
8.1.3	<i>Optimale Gittergröße und Rechenzeit</i>	105
8.1.4	<i>Benchmarkstudie</i>	108
8.2	Validierung anhand eines konditionierten Referenzfasses	108
9	Rekonstruktion heterogener Radionuklidinventare - Simulationsstudie	111
9.1	Zielsetzung	112
9.2	Simulationssets	112
9.3	Anzahl an erforderlichen χ^2 -Iterationen	114
9.4	Benchmarkberechnungen bei einer Punktquelle	115
9.5	Systematikstudie zum Einfluss des Scanmodus	120
9.6	Modellwahl, statistische Unsicherheiten und Rechenzeiten	123
9.7	Benchmarkberechnung bei unbekannten Matrixdichten	127

9.8	Benchmarkberechnung bei Ensembles aus mehreren Punktquellen	128
9.9	Evaluation eines Gütekriteriums	132
9.10	Systematikstudie für ausgedehnte Quellen	133
9.11	Maximal nicht-detektierbare Aktivitäten	136
10	Rekonstruktion heterogener Radionuklidinventare - Messstudie	139
10.1	Testfassabschnitt und Prüfstrahler	140
10.2	Rekonstruktion von einzelnen Quellen	142
10.3	Vergleiche zwischen Standard- und Alternativscanmodus	144
10.4	Rekonstruktion von Ensembles zweier Quellen	145
10.5	Rekonstruktion von abgeschirmten Quellen	147
10.6	Anwendung bei konditionierten Abfallfässern	150
11	Entwicklungspotential für γ-spektrometrische Messverfahren	153
11.1	LaBr ₃ -Detektoren in SGS-Messsystemen	154
11.2	Transmissionskorrigierte SGS-Messungen	155
12	Zusammenfassung - Leistungsfähigkeit von SGSreco	157
A	Deklarationspflichtige Radionuklide für das Endlager Konrad	161
B	Ergebnisse aus der Reanalyse von realen Abfallfässern mit SGSreco	167
	Abbildungsverzeichnis	I
	Tabellenverzeichnis	V
	Literaturverzeichnis	VII
	Danksagung	XIII

Abkürzungsverzeichnis

AkEnd	Arbeitskreis Endlagerstandortsuche	ILW	Intermediate Level Waste
AtG	Atomgesetz	ITM	Impossible-To-Measure
BfS	Bundesamt für Strahlenschutz	LLW	Low Level Waste
BMI	Bundesministerium des Inneren	MNDA	maximal nicht-detektierbare Aktivität
BMU	Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit	PTB	Physikalisch-Technische Bundesanstalt
DTM	Difficult-To-Measure	PE	Polyethylen
ETM	Easy-To-Measure	PVC	Polyvinylchlorid
ECT	Emissionscomputertomographie	RSK	Reaktor-Sicherheitskommission
FWHM	Full Width at Half Maximum	ROI	Region of interest
EVU	Energieversorgungsunternehmen	SGS	Segmentierte γ -Scan Messung
GRS	Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit mbH	StandAG	Standortauswahlgesetz
GNS	Gesellschaft für Nuklear-Service mbH	StrlSchV	Strahlenschutzverordnung
GG	Grundgesetz	SSK	Strahlenschutzkommission
HLW	High Level Waste	TCT	Transmissionscomputertomographie
HPGe	High-Purity Germanium	T-SGS	Transmissionskorrigierte Segmentierte γ -Scan Messung
IGS	Integrale γ -Scan Messung	WIPP	Waste Isolation Pilot Plant
IAEA	International Atomic Energy Agency	WAK	Wiederaufbereitungsanlage Karlsruhe

1

Endlagerung radioaktiver Abfälle in der Bundesrepublik Deutschland

INHALT:

1.1	Ziele der Endlagerung	2
1.2	Klassifizierung von radioaktiven Abfällen	3
1.3	Stand der Endlagerung weltweit	3
1.4	Bestand und Prognosen für konditionierte Abfälle	4
1.5	Endlagerung wärmeentwickelnder Abfälle	6
1.6	Endlagerung vernachlässigbar wärmeentwickelnder Abfälle	8

1.1 Ziele der Endlagerung

DIE ZIVILE NUTZUNG DER KERNENERGIE sowie die militärische Anwendung der Kerntechnik sind eng mit der Frage nach der Entsorgung beziehungsweise der Endlagerung radioaktiver Abfälle verbunden. In der Bundesrepublik Deutschland ist gemäß Art. 73 Abs. 1 Nr. 14 des Grundgesetzes (GG) festgelegt, dass die Nutzung der Kernenergie ausschließlich zu friedlichen Zwecken zu gewähren ist und die Aufgaben der Gesetzgebung in diesen Fragestellungen dem Bund obliegt. Gemäß § 9a Abs. 3 Satz 1 des Atomgesetz (AtG) liegt es auch in der Verantwortung des Bundes, Anlagen zur Endlagerung radioaktiver Abfälle zu errichten, zu betreiben und zu überwachen. Nach § 9a Abs. 3 Satz 3 des AtG kann der Bund diese Pflichten allerdings auch ganz oder teilweise an Dritte übertragen. Bis zur Endlagerung müssen radioaktive Abfälle aus kerntechnischen Anlagen nach §§ 6, 7 und 9 AtG in Zwischenlagern der Abfallverursacher gelagert werden. Abfälle aus der Forschung, der Nuklearmedizin sowie von weiteren Verursachern werden gemäß §§ 7 und 11 der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV) den Landessammelstellen zugeführt, welche im Verantwortungsbereich der Länder liegen (§ 9a Abs. 3 Satz 1 AtG).

DIE ZIELE DER ENDLAGERUNG wurden im März 1984 vom damals zuständigen Bundesministerium des Inneren (BMI) festgehalten.¹ Oberstes Ziel der Endlagerung ist es, den Schutz von Mensch und Umwelt vor der schädlichen Wirkung der ionisierenden Strahlung aus radioaktiven Abfällen sicherzustellen. Um diesem Schutzziel genüge zu tun, ist in der Bundesrepublik Deutschland die Endlagerung von radioaktiven Abfällen, unabhängig von ihrem radiotoxischen Gefahrenpotential, in geeigneten tiefen geologischen Formationen vorgesehen. Unter geeigneten geologischen Formationen versteht man dabei Wirtsgesteinsformationen, die radioaktive Abfälle sicher vor der Biosphäre abschließen und somit die zusätzliche Strahlenbelastung für die Bevölkerung durch die Abfälle minimieren. Das größte Gefahrenpotential bei der Endlagerung birgt der Integritätsverlust der Einschlusswirksamkeit des Wirtsgesteins und der damit entstehenden Wasserwegsamkeiten. Wasserwegsamkeiten können zur Migration von radio- und chemotoxischen Substanzen in das Grundwasser und somit in die Biosphäre führen. Nach den aktuell geltenden Sicherheitsanforderungen für die Endlagerung von radioaktiven Abfällen,² die vom Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) im Jahr 2010 veröffentlicht wurden, muss daher im Einklang mit einer Studie der Reaktor-Sicherheitskommission (RSK) und Strahlenschutzkommission (SSK)³ aus dem Jahr 1988 für einen Zeitraum von einer Millionen Jahren nachgewiesen, dass allenfalls sehr geringe Schadstoffmengen aus einem Endlager freigesetzt werden. Dies ist ebenfalls im Einklang mit der Studie zur Endlagerung von radioaktiven Abfällen der International Atomic Energy Agency (IAEA) aus dem Jahr 2006.⁴

¹ Bundesministerium des Inneren. *Sicherheitskriterien für die Endlagerung radioaktiver Abfälle in einem Bergwerk*. Techn. Ber. Bonn, 1984.

² Bundesministerium für Umwelt Naturschutz und Reaktorsicherheit. *Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle*. Techn. Ber. Berlin, 2010.

³ Reaktor-Sicherheitskommission und Strahlenschutzkommission. *Zeitraumen für die Beurteilung der Langzeitsicherheit eines Endlagers für radioaktive Abfälle*. Techn. Ber. Bonn, 1988.

⁴ International Atomic Energy Agency. *Geological Disposal of Radioactive Waste*. Techn. Ber. Wien, 2006.

1.2 Klassifizierung von radioaktiven Abfällen

DIE KLASSIFIZIERUNG RADIOAKTIVER ABFÄLLE HÄNGT VON DEN weltweit verschiedenen Konzepten ihrer Endlagerung ab. Wesentlich ist hier die Frage, ob radioaktive Abfälle in tiefen geologischen Formationen oder oberflächennah gelagert werden sollen. Hieraus ergeben sich aus Sicht der Langzeitsicherheit des Endlagers verschiedene Anforderungen sowohl an das radionuklidspezifische Aktivitätsinventar als auch an die potentielle Wärmeentwicklung der radioaktiven Abfälle. Die Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit mbH (GRS) hat im Jahr 2004 einen Bericht über die Klassifizierung von radioaktiven Abfällen herausgegeben, der die wesentlichen länderspezifischen Klassifizierungsstrukturen zusammenfasst.⁵ Im internationalen Umfeld werden die Abfälle meistens anhand ihrer Dosisleistungen beziehungsweise spezifischen Aktivitäten in verschiedene Kategorien eingeteilt, wie in Abbildung 1.1 in blau gezeigt. Man unterscheidet zwischen hochradioaktiven Abfällen -eng. High Level Waste (HLW)-, mittlerradioaktiven Abfällen -eng. Intermediate Level Waste (ILW)- und schwachradioaktiven Abfällen -eng. Low Level Waste (LLW)-. In der Bundesrepublik Deutschland werden radioaktive Abfälle aufgrund ihrer Wärmeentwicklung in vernachlässigbar wärmeentwickelnde und wärmeentwickelnde Abfälle unterteilt, wie es in Abbildung 1.1 in orange gezeigt ist. Diese Unterscheidung wurde im Hinblick auf die Endlagerung von radioaktiven Abfällen in tiefen geologischen Formationen getroffen. Bei einer Wärmeentwicklung in einem Endlager in einer tiefen geologischen Formation kann die Integrität der Einschlusswirksamkeit der Formationen negativ beeinflusst und die Migration von Radionukliden in das Grundwasser ermöglicht werden. Vernachlässigbar wärmeentwickelnde Abfälle können beispielsweise aus Schutzkleidungen, Reinigungsmittel, Werkzeugen oder ausgedienten Anlagenteilen aus Kernkraftwerken, wie Rohrleitungen und Pumpen, die nur eine geringe Kontamination oder Aktivierung aufweisen, bestehen. Wärmeentwickelnde Abfälle hingegen sind durch sehr hohe spezifische Aktivitäten gekennzeichnet und bestehen größtenteils aus Rückbaukomponenten aus dem inneren Bereich des Reaktors eines Kernkraftwerkes, aus Rückständen aus der Wiederaufbereitung und aus abgebrannten Brennelementen.

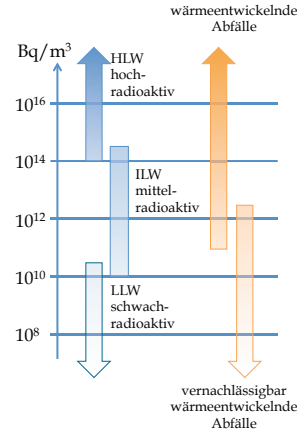


Abbildung 1.1: Klassifizierung radioaktiver Abfälle nach spezifischer Aktivität (blau) beziehungsweise Wärmeentwicklung (orange).

⁵ A. Rübel, I. Müller-Lyda und R. Storck. Die Klassifizierung radioaktiver Abfälle hinsichtlich der Endlagerung. Techn. Ber. Köln: Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, 2004.

1.3 Stand der Endlagerung weltweit

WELTWEIT WERDEN UNTERSCHIEDLICHE STANDORTE hinsichtlich einer möglichen Eignung als Endlager erforscht. In Bezug auf die Endlagerung von HLW beziehungsweise wärmeentwickelnden Abfällen, gilt die Endlagerung in tiefen geologischen Formationen als internationaler Konsens. Hierzu werden insbesondere Wirtsgesteinsformationen aus Ton, Salz und Granit untersucht. Weltweit ist es bis heute allerdings nur in Finnland und Schweden gelungen einen














	Name	Abfallklasse	Gestein	Tiefe [m]	Start	Kapazität [m ³]
	NowiChan [†]	LLW		6	1964	
	Loviisa	LLW, ILW	Granit	120	1997	113000
	Olkiluoto	LLW, ILW	Tonalit	60	1992	60000
	Centre de l'Aube [†]	LLW			1992	1000000
	Drigg [†]	LLW		8	1959	750000
	Rokkasho [†]	LLW			1992	80000
	SFR Forsmark	LLW, ILW	Granit	60	1988	63000
	El Cabril [†]	LLW, ILW			1991	36000
	Bratrstvi	nat. Radionuklide	Uranmine	50	1972	
	Dukovany [†]	LLW, ILW			1995	55000
	Richard [†]	künst. Radionuklide		70-90	1964	8400
	Püspökszilagy	LLW, ILW	Tonalit		1976	5000
	WIPP	Transurane	Salz	650	1999	180000

Tabelle 1.1: Weltweit im Betrieb befindliche Endlager für schwach- und mittelaktive beziehungsweise vernachlässigbar wärmeentwickelnde Abfälle. Die mit [†] gekennzeichneten Endlager sind oberflächennahe Endlager. Bei leeren Feldern liegen keine entsprechenden Angaben vor.

Endlagerstandort für HLW zu identifizieren. In Finnland wurden dazu insgesamt vier Standorte in Granitformationen erkundet, die sich alle als geeignete Kandidaten herausstellten. Durch die Einbeziehung von wirtschaftlichen und logistischen Aspekten sowie der Bevölkerung wurde schließlich der Standort Olkiluoto ausgewählt. In 2012 wurde die Baugenehmigung für die Errichtung eines Endlager für HLW an diesem Standort erteilt. Nach aktuellem Planungsstand soll der Endlagerbetrieb in 2020 aufgenommen werden. In Schweden werden derzeit die im März 2011 eingereichten Anträge für den Bau eines Endlagers für HLW in einer Granitformation am Standort Forsmark von der zuständigen schwedischen Genehmigungsbehörde unter Einbeziehung internationaler Experten geprüft. Nach derzeitigen Angaben der Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company ist mit einer Inbetriebnahme des Endlagers um 2020 zu rechnen. Für LLW und ILW beziehungsweise vernachlässigbar wärmeentwickelnde Abfälle sind zur Zeit 13 Endlager in Betrieb. Die Kenndaten dieser Endlager sind in Tabelle 1.1 zusammengefasst. Insgesamt sieben dieser Endlager werden oberflächennah betrieben. Lediglich das Waste Isolation Pilot Plant (WIPP) nahe Carlsbad (New Mexico) in den USA wird mit einer tiefe von 650 m als Endlager in einer Salzformation betrieben.

1.4 Bestand und Prognosen für konditionierte Abfälle

DAS AUFGKOMMEN AN RADIOAKTIVEN ABFÄLLEN in der Bundesrepublik Deutschland setzt sich aus Abfällen aus

- der Betriebsphase von Kernkraftwerken,
- der Stilllegung und dem Rückbau von Kernkraftwerken,
- der Kernbrennstoffversorgung und -entsorgung,
- Forschungsarbeiten an Universitäten und anderen Forschungseinrichtungen,

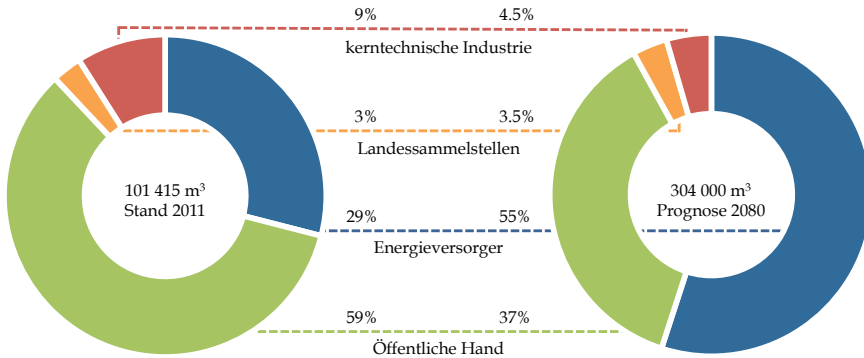


Abbildung 1.2: Verursacher von konditionierten vernachlässigbar wärmeentwickelnden Abfällen zum Stand 2011 und prognostiziert für das Jahr 2080.

- der Industrie und
- der Medizin

zusammen. Der Großteil der endzulagernden Abfälle wird letztendlich aus der Stilllegung und dem Rückbau von Kernkraftwerken beziehungsweise von Forschungsreaktoren erwartet. Mit den Erfahrungen aus der Stilllegung und dem Rückbau von kerntechnischen Anlagen aus den letzten Jahren⁶ konnte gezeigt werden, dass ohne Brennelemente ca. 95 % der Abfallmasse aus dem Rückbau eines Kernkraftwerkes aus dem Atomgesetz entlassen werden konnte. Dies sind zumeist Gebäudestrukturen. Rund 1-2 % der Abfallmasse konnten nach einer geeigneten Behandlung ebenfalls aus dem Atomgesetz entlassen werden. Nur rund 3 % müssen als vernachlässigbar wärmeentwickelnde Abfälle endgelagert werden. Im Falle eines Siedewasserreaktors sind demnach rund 5200 m³ und im Falle eines Druckwasserreaktors rund 3200 m³ an konditionierten endzulagernden Abfällen zu erwarten.⁷

⁶ S. Thierfeld und F. Schartmann. *Stilllegung und Rückbau kerntechnischer Anlagen - Erfahrungen und Erwartungen*. Techn. Ber. Aachen: Brenk Systemplanung GmbH, 2012.

⁷ Ebd., S. 78-79.

DER BESTAND an konditionierten radioaktiven Abfällen in der Bundesrepublik Deutschland wurde vom Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) mit Stand vom 31.12.2011 zusammengetragen und auf seiner Homepage unter dem Stichwort Abfallbestand publiziert.⁸ Demnach waren zu diesem Zeitpunkt ca. 101 415 m³ an konditionierten Abfällen mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung sowie ca. 727 m³ an Abfällen mit Wärmeentwicklung vorhanden. Im linken Teil von Abbildung 1.2 ist der derzeitige Bestand an vernachlässigbar wärmeentwickelnden Abfällen aufgeteilt nach Kostenträgern gezeigt. Rund 59 % der konditionierten Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung stammen derzeit aus der öffentlichen Hand. Dies sind im Wesentlichen Abfälle aus dem Betrieb und dem Rückbau von Forschungsreaktoren. Insgesamt 3 % der konditionierten Abfälle lagern in den Landessammelstellen. Nur rund 0,5 % der bereits konditionierten vernachlässigbar wärmeentwickelnden Abfälle stammen aus der Medizin.

⁸ Bundesamt für Strahlenschutz. *Endlager > Abfälle*. 2013. URL: www.bfs.de/de/endlager/abfaelle, Stichwort: Abfallbestand.

MIT DER ÄNDERUNG DES AtG im August 2011 und der damit verbundenen geordneten Beendigung der Kernenergieproduktion, erlischt die Betriebsgenehmigung von Kernkraftwerken zum einen, wenn die für das jeweilige Kernkraftwerk festgeschriebene Elektrizitätsmenge produziert ist (Anlage 3 zu § 7 Abs. 1a AtG) und zum anderen, wenn die aufgrund von Übertragungen ergebende Elektrizitätsmenge erzeugt worden ist (§ 7 Abs. 1b AtG). Für alle aktiv betriebenen Kernkraftwerke wurde zudem ein Termin festgelegt, an dem der Leistungsbetrieb spätestens endet (§ 7 Abs. 1a AtG). Demnach werden spätestens im Jahre 2022 die letzten drei Kernkraftwerke Isar 2, Lingen/Emsland und Neckarwestheim 2 vom Netz genommen. Basierend auf diesen Annahmen kann das Abfallaufkommen von den Energieversorgungsunternehmen (EVU) durch die Gesellschaft für Nuklear-Service mbH (GNS)⁹ bis zum Jahre 2080 prognostiziert werden.¹⁰ Zusammen mit den bereits jetzt konditionierten Abfällen erwartet man im Jahr 2080 insgesamt 304 000 m³ vernachlässigbar wärmeentwickelnde Abfälle. Gemäß dem rechten Teil der Abbildung 1.2 sind ca. 55 % dieser Abfälle den EVUs zu zuschreiben. Diese starke Erhöhung des Anteils der EVUs an den konditionierten vernachlässigbar wärmeentwickelnden Abfällen ist durch die Stilllegung und dem Rückbau von zur Zeit in der Betriebsphase befindlichen Kernkraftwerken zu erklären. Rund 10 000 m³ und somit rund 3,5 % der Abfälle werden von den Landessammelstellen prognostiziert. Bei der Prognose zu den Mengen an wärmeentwickelnden Abfällen wird von einer direkten Endlagerung abgebrannter Brennelemente in Pollux-Behältern¹¹ ausgegangen. Insgesamt werden 21 800 m³ an wärmeentwickelnden Abfällen erwartet. Diese teilen sich auf in 1435 m³ aus den Wiederaufbereitungsanlagen im französischen La Hague und dem englischen Sellafield, in 26 530 m³ an direkt endzulagernden Brennelementen und in 180 m³ an sonstigen Abfällen aus der Wiederaufbereitungsanlage Karlsruhe (WAK).

⁹ Die GNS übernimmt die Entsorgungsaufgaben für die EVU.

¹⁰ Bundesamt für Strahlenschutz, *Endlager > Abfälle*, s. Anm. 8, Stichwort: Abfallprognosen.

¹¹ Beim Konzept des Pollux-Behälters werden die Brennstäbe als Ganzes zunächst in Büchsen und diese dann in den Behälter eingebracht.

1.5 Endlagerung wärmeentwickelnder Abfälle

IM JAHR 1979 wurde aus insgesamt 140 Salzstöcken der Salzstock in Gorleben (Niedersachsen) als Standort mit der besten Eignung für die Endlagerung wärmeentwickelnder Abfälle in der Bundesrepublik Deutschland ausgewählt. Daraufhin wurde die übertägige Erkundung im Jahr 1979 und die untertägige Erkunden im Jahr 1986 gestartet. Das Erkundungsbergwerk Gorleben befindet sich in einer Tiefe von 840 m bis 933 m. Im Jahr 2002 vereinbarten die Bundesregierung und die EVUs ein Moratorium zur Klärung konzeptioneller Fragen zur geordneten Beendigung der Kernenergieproduktion. Während dieser Zeit setzte auch die Erkundung des Salzstockes in Gorleben (Niedersachsen) aus, um konzeptionelle Fragestellungen für die Endlagerung wärmeentwickelnder Abfälle zu beantworten. Das BIS fasste in einem Synthesebericht aus dem Jahre 2005 im Rahmen des Moratoriums Antworten auf konzeptionelle und sicherheitstechnische Fragen der

Endlagerung zusammen.¹² Insbesondere wurde unabhängig vom möglichen Standort Gorleben ein Vergleich zwischen Ton-, Granit- und Salzformation als Endlagerstätten durchgeführt. Das BfS beschäftigte sich in diesem Synthesebericht mit zwölf Kernpunkten:

1. Naturbeobachtungen von natürlichen sowie menschlichen Einflüssen und deren Sicherheitsbewertung.
2. Modellrechnung für probabilistische Methoden im Langzeitsicherheitsnachweis.
3. Isolationspotenzial und Nachweiszeitraum der Einschlusswirksamkeit von Wirtsgesteinen.
4. Sicherheitsindikatoren zur Bewertung der Langzeitsicherheit.
5. Geochemische Prozesse bei der Ausbreitung von Schadstoffen.
6. Chemotoxische Stoffe und die Bewertung ihrer Freisetzung.
7. Gasbildung und die damit verbundene Beeinflussung der Integrität des Wirtsgesteins.
8. Kritikalität in der Nachbetriebsphase.
9. Menschliche Einwirkungen in Zusammenhang mit der Langzeitsicherheit.
10. Mehrbarrierenkonzept zur Einhaltung der Schutzziele.
11. Rückholbarkeit und die sicherheitstechnischen Konsequenzen.
12. Internationale Kernmittelüberwachung (Safeguards).

Das wesentliche Ergebnis dieser Analyse ist, dass grundsätzlich keines der Wirtsgesteine immer die größte Endlagersicherheit garantiert. Die Wirtsgesteinsoptionen können nur anhand konkreter Standorte verglichen werden. Ferner hat sich der durch das BMU gebildete Arbeitskreis Endlagerstandortsuche (AkEnd) in seinem Abschlussbericht über Auswahlverfahren für die Endlagerstandorte auch zu einem Einbezug sozio-ökonomischer Aspekte ausgesprochen.¹³ Die Endlagersuche soll daher für die breite Bevölkerung transparent sein. Laut AkEnd sei dabei wichtig, dass mindestens zwei Standorte untertägig erkundet und einer Sicherheitsbewertung unterzogen werden. Weiterhin, soll das Votum der Bevölkerung berücksichtigt werden. Im Oktober 2010 wurde auf Wunsch des BMU eine Verlängerung des Rahmenbetriebsplans für das Erkundungsbergwerk Gorleben genehmigt. Zeitgleich wurde durch die GRS und diverse Projektpartner, finanziert durch das BMU, die vorläufige Sicherheitsanalyse für den Endlagerstandort Gorleben initiiert.¹⁴ Aufgrund der vorhandenen Daten zum Standort Gorleben, sollte analysiert werden, ob und unter welchen Voraussetzung der Standort Gorleben für die Endlagerung wärmeentwickelnder Abfälle unter der Randbedingung der vom BMU definierten Sicherheitsanforderungen geeignet ist. Zusätzlich sollte ein möglicher Forschungs- und Entwicklungsbedarf identifiziert werden.

¹² Bundesamt für Strahlenschutz. *Konzeptionelle und Sicherheitstechnische Fragen der Endlagerung Radioaktiver Abfälle - Wirtsgesteine im Vergleich.* Techn. Ber. Salzgitter, 2005.

¹³ Arbeitskreis Auswahlverfahren Endlagerstandorte. *Auswahlverfahren für Endlagerstandorte.* Techn. Ber. Köln, 2002.

¹⁴ Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit mbH. *Vorläufige Sicherheitsanalyse Gorleben.* 2013. URL: <http://www.grs.de/vorlaeufige-sicherheitsanalyse-gorleben-vsg>.

Aufgrund der politischen Überzeugung wurde die Fragestellung nach einer möglichen Eignung des Endlagerstandortes Gorleben revidiert, da eine Eignung nunmehr nur im Vergleich mit anderen Endlagerstandorten festgestellt werden soll. Die Erkundung des Salzstockes Gorleben ist seit November 2012 auf Anweisung des Bundesumweltministers Peter Altmaier (CDU) wieder eingestellt. Es ist nun parteiübergreifender Konsens mit einem neuen Standortauswahlgesetz (StandAG) eine unvoreingenommene und ergebnisoffene Suche nach einer geeigneten Endlagerstätte zu starten. Am 24.04.2013 billigte das Bundeskabinett formal diesen Gesetzentwurf zum Neustart der Standortauswahl für ein Endlager, der am 28.06.2013 auch vom Bundestag beschlossen wurde. Am 05.07.2013 verabschiedete letztendlich auch der Bundesrat diesen Gesetzentwurf. Bis Ende 2015 sollen von einer Kommission zur Lagerung von hochradioaktiven Abfallstoffen mit Vertretern aus dem Bundestag, den Landesregierungen, der Wissenschaft, den Umweltverbänden, den Religionsgemeinschaften, der Wirtschaft und aus den Gewerkschaften ein Bericht erarbeitet werden, in dem für das Auswahlverfahren relevante Grundsatzfragen für die Entsorgung von hochradioaktiven Abfällen untersucht und bewertet werden. Zudem soll dieser Bericht Vorschläge für die Entscheidungsgrundlage und eine entsprechende Handlungsempfehlung für den Bundestag und Bundesrat enthalten. Letztendlich soll bis 2031, nach der unterirdischen Erkundung mehrerer Standorte, ein Endlagerstandort bestimmt werden. Nach derzeitigem politischen Willen, ist der Salzstock Gorleben bei dieser neuen Endlagersuche nicht ausgeschlossen.

1.6 Endlagerung vernachlässigbar wärmeentwickelnder Abfälle

VERNACHLÄSSIGBAR WÄRMEENTWICKELNDE ABFÄLLE sollen in der Bundesrepublik Deutschland im Endlager Schacht Konrad entsorgt werden. Der Schacht Konrad ist ein seit 1976 stillgelegtes Eisenerz-Bergwerk im Raum Salzgitter (Niedersachsen). Der Eisenerzabbau wurde in einer Tiefe von 800 m bis 1300 m betrieben. Das Eisenerz-Bergwerk Konrad ist aufgrund einer ca. 200 m bis 400 m mächtigen Tonschicht im Deckgebirge sehr gut gegen das Eindringen von Wasser und somit vor der Biosphäre geschützt. Aus diesem Grund begann 1975 die Eignungsprüfung der Schachanlage Konrad für die Endlagerfähigkeit von vernachlässigbar wärmeentwickelnden Abfällen durch die Gesellschaft für Strahlen- und Umweltbelastung mbH.¹⁵ Im Abschlussbericht dieser Studie wurde, unter Berücksichtigung der Anforderungen des BMI, die Eignung der Schachanlage Konrad für die Endlagerung von vernachlässigbar wärmeentwickelnden Abfällen festgestellt und die kerntechnische Sicherheit des Betriebs nachgewiesen.¹⁶ Im Hinblick auf die Eignung des Eisenerz-Bergwerkes Konrad wurden im Wesentlichen die folgende neun Punkte untersucht:

¹⁵ Gesellschaft für Strahlen und Umweltforschung mbH. *Eignungsprüfung der Schachanlage Konrad für die Endlagerung radioaktiver Abfälle*. Techn. Ber. Braunschweig: Institut für Tiefenlagerung, 1982.

¹⁶ Bundesministerium des Inneren, s. Anm. 1; Gesellschaft für Strahlen und Umweltforschung mbH, s. Anm. 15.

1. Geologische Merkmale
2. Gesteinskundliche Merkmale
3. Hydrologische Merkmale
4. Gebirgsmechanische Sicherheit
5. Anlagentechnische Merkmale
6. Nutzungsmerkmale der Anlage
7. Abfalltechnische Merkmale
8. Strahlenschutztechnische Merkmale
9. Sicherheitsanforderung für den langfristigen Abschluss der Abfälle

Die damals zuständige Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) leitete im August 1982 auf Basis der Eignungsfeststellung der Schachtanlage Konrad für die Endlagerung vernachlässigbar wärmeentwickelnder Abfälle das Planfeststellungsverfahren ein. Schließlich wurde dem Endlager Schacht Konrad im Jahr 2002 der Planfeststellungsbeschluss erteilt.¹⁷ Im Jahr 2008 sind auch die letzten Rechtsmittel gegen den Planfeststellungsbeschluss gescheitert. Heute geht man davon aus, dass die Endlagerung im Jahr 2021 begonnen wird. Insgesamt ist das Endlager Konrad für eine Endlagerung von 303 000 m³ vernachlässigbar wärmeentwickelnde Abfälle genehmigt.

¹⁷ Niedersächsisches Umweltministerium. *Planfeststellungsbeschluss für die Errichtung und den Betrieb des Bergwerkes Konrad in Salzgitter als Anlage zur Endlagerung fester und verfestigter radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung*. Techn. Ber. Hannover, 2002.

2

Radiologische Anforderung an Abfälle für das Endlager Konrad

INHALT:

2.1	Konditionierung radioaktiver Abfälle	12
2.2	Anforderungen aus den Endlagerungsbedingungen	12
2.3	Produktkontrolle von radiologischen Anforderungen	15
2.4	Notwendigkeit der experimentellen radiologischen Charakterisierung	16

2.1 Konditionierung radioaktiver Abfälle

ZIEL DER KONDITIONIERUNG RADIOAKTIVER ABFÄLLE ist die Herstellung eines endlagerfähigen Abfallgebundes. Konditionierte Abfallgebünde müssen daher die in Abschnitt 2.2 beschriebenen Endlagerungsbedingung für das Endlager Konrad erfüllen.¹⁸ In Tabelle 2.1 sind die wesentliche Konditionierungsschritte von festen, beziehungsweise flüssigen, organischen und anorganischen Abfällen zu Abfallprodukten basierend auf einem Bericht des TÜV Süd zusammengefasst.¹⁹ Bei der Konditionierung werden aus Rohabfällen Abfallprodukte hergestellt, die zumeist in 2001 oder 4001 Abfallfässer, die sogenannte Innenverpackung, gefüllt werden. Diese Abfallfässer werden anschließend in endlagerfähige Container verpackt und entstandene Hohlräume werden je nach Abfallproduktgruppe gegebenenfalls mit entsprechenden Füllmaterialien vergossen. Die mit konditionierten Abfallprodukten gefüllten Container werden als Abfallgebünde bezeichnet. Zudem können Abfallprodukte oder Innenbehälter in zylindrische Endlagerbehälter, die je nach Anforderung unterschiedliche Dimensionen und Wandstärke besitzen, verfüllt beziehungsweise verpackt werden.²⁰ Ein wichtiger Schritt bei der Konditionierung von radioaktiven Abfällen ist die Volumenreduktion durch Verbrennung und Verpressung. Bei der Verbrennung von festen beziehungsweise brennbaren flüssigen Abfällen, wie beispielsweise Öle und Schlämme, kann eine Volumenreduktion bis zu einem Faktor 100 erreicht werden.²¹ Feste, nicht brennbare Abfälle werden möglichst entsprechend ihrer stofflichen Zusammensetzung sortiert und in Metallkartuschen verfüllt. Die befüllten Metallkartuschen werden anschließend in einer Hochdruckpresse zu Presslingen kompaktiert. Flüssige nicht brennbare Abfälle werden durch eine Trocknung oder Zementierung zu festen Abfallprodukten verarbeitet.

2.2 Anforderungen aus den Endlagerungsbedingungen

ANFORDERUNGEN AN ENDZULAGERNDE RADIOAKTIVE ABFÄLLE für das Endlager Konrad (Endlagerungsbedingungen) wurden vom BfS

¹⁸ P. Brennecke. *Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle (Endlagerungsbedingungen, Stand: Oktober 2010) - Endlager Konrad* -. Techn. Ber. Salzgitter: Bundesamt für Strahlenschutz, 2011.

¹⁹ W. Plank und W. Eder. *Entsorgung radioaktiver Abfälle*. Techn. Ber. TÜV Süd, 1997.

²⁰ Bundesamt für Strahlenschutz. *Endlager-Konrad*. 2013. URL: www.endlager-konrad.de, Stichwort Abfallbehälter.

²¹ Gesellschaft für Nuklear-Service mbH. *Webpage*. 2013. URL: www.gns.de.

Tabelle 2.1: Herstellung von Abfallprodukten aus Rohabfällen und den zugehörigen Vorbehandlungen, Zwischenprodukten und Behandlungen.

Rohabfall	Vorbehandlung	Zwischenprodukt	Behandlung	Abfallprodukt
fest und anorganisch	Dekontaminieren Zerkleinern Pressen Schmelzen	anorganische Festabfälle	Kompatieren Trocknen Zementieren Verpacken	Presslinge oder Feststoffe
fest und organisch	Zerkleinern Pressen Schmelzen	organische Festabfälle, Aschen/Schlacken	Kompatieren Trocknen Verpacken	Presslinge
flüssig und anorganisch	Entwässern Filtrieren Verdampfen	Harze/Schlämme, Filtrückstände, Verdampferkonzentrate	Trocknen Nachentwässern Betonieren	Feststoffe
flüssig und organisch	Verbrennung	-	-	-

mit Stand Oktober 2010, basierend auf dem Planfeststellungsbeschluss für das Endlager Konrad und auf wasserrechtlichen Bestimmungen, festgelegt.²² Die Endlagerbarkeit von Abfallgebinden wurde hinsichtlich des bestimmungsgemäßen Betriebes, der unterstellten Störfälle, der thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins²³, der Kritikalitäts-sicherheit und der radiologischen Langzeitauswirkungen untersucht. Diese Sicherheitsanalysen bilden die Grundlage für die Anforderung an chemische, physikalische, stoffliche und radiologische Eigenschaften der Abfallgebinde. Grundsätzlich wurden in den Abschnitten 3 bis 7 der Endlagerungsbedingungen fünf Klassen an Anforderungen definiert:

Abs. 3: Anforderungen an die Abfallgebinde.

Abs. 4: Anforderungen an die Abfallprodukte.

Abs. 5: Anforderungen an die Abfallbehälter.

Abs. 6: Aktivitätsbegrenzungen.

Abs. 7: Massenbegrenzungen nichtradioaktiver schädlicher Stoffe.

ANFORDERUNGEN AN DIE ABFALLGEBINDE beziehen sich sowohl auf die drucklose Anlieferung als auch auf deren Aufschwimmfähigkeit bei einem Pumpversatz. Des Weiteren, werden hier radiologische Forderungen an die Ortsdosisleistung und an die Flächenkontamination gestellt. Diese Anforderungen dienen der Sicherheit des Betriebspersonals während des bestimmungsgemäßen Betriebs des Endlagers. Die Ortsdosisleistung zum Zeitpunkt der Anlieferung darf an der Oberfläche des Abfallgebundes im Mittel $2 \times 10^{-3} \text{ Sv h}^{-1}$ nicht überschreiten. Zusätzlich darf ein lokaler Maximalwert von $1 \times 10^{-2} \text{ Sv h}^{-1}$ nicht überschritten werden. Bei zylindrischen Abfallgebinden darf in 1 m Abstand und bei quaderförmigen Abfallgebinden in 2 m Abstand ein Wert von $1 \times 10^{-4} \text{ Sv h}^{-1}$ nicht überschritten werden. Die Flächenkontamination ist für α -Strahler, für die eine Freigrenze von $5 \times 10^3 \text{ Bq}$ festgelegt ist, auf $0,5 \text{ Bq cm}^{-2}$ eingeschränkt. Für β -Strahler beziehungsweise für ϵ -Strahler, für die eine Freigrenze von $5 \times 10^6 \text{ Bq}$ gilt, ist eine Begrenzung auf 50 Bq cm^{-2} festgelegt. Für sonstige Radionuklide liegt die Begrenzung bei 5 Bq cm^{-2} .

ANFORDERUNG AN DIE ABFALLPRODUKTE beziehen sich auf den Aggregatzustand, die Brennbarkeit, die Fähigkeit zur Selbstentzündung beziehungsweise Explosion, die mögliche Faulung beziehungsweise Gärung, den Gas- oder Flüssigkeitsanteil und die potentielle Kritikalität. Aus radiologischer Sicht dürfen beispielsweise nur bis zu 50 g an spaltbaren Stoffen aus natürlichem und angereichertem Uran pro $0,1 \text{ m}^3$ Abfallprodukt vorhanden sein. Enthalten die Abfälle Moderator-, beziehungsweise Reflektormaterialien, ist eine Einzelprüfung durch das BfS erforderlich.

ANFORDERUNGEN AN DIE ABFALLBEHÄLTER beruhen im Wesentlichen auf der Handhabbarkeit der Gebinde während der Betriebsphase

²² Niedersächsisches Umweltministerium, s. Anm. 17; Brennecke, s. Anm. 18.

²³ Die Temperaturerhöhung am Kammerstoß, der Wand eines Lagerschachtes, darf nicht mehr als 3 K betragen.

des Endlagers. So werden Anforderungen an die Form, die maximale Höhe, die Stapelbarkeit, die Korrosionsfähigkeit, die spezifizierte Dichtheit und an die Integrität bei Temperaturerhöhung sowie bei Stürzen aus mehreren Metern Höhe gestellt.

AKTIVITÄTSBEGRENZUNGEN beruhen auf den Sicherheitsanalysen zum bestimmungsgemäßen Betrieb, den unterstellten Störfällen, der thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins und der Kritikalität. Für jede dieser Sicherheitsanalysen wurde eine Tabelle mit Aktivitätsbegrenzungen für einzelne Radionuklide beziehungsweise Radionuklidgruppen abhängig von der Abfallproduktgruppe und von den Endlagerbehältern angefertigt.²⁴ In Tabelle 2.2 sind die am Ende der Betriebsphase maximal endlagerbaren Aktivitäten und Aktivitätskonzentrationen für Radionuklide beziehungsweise Radionuklidgruppen mit den zugehörigen Halbwertszeiten und Zerfallsmodi aufgeführt. Die angegebenen zehn Radionuklide und zwei Radionuklidgruppen sind bei Sicherheitsanalysen für die Nachbetriebsphase als sicherheitsrelevant erachtet worden. Diese Radionuklide dominieren die Radiotoxizität der Abfälle über den Nachweiszeitraum von 10 000 Jahren. Insgesamt dürfen nicht mehr als $1,5 \times 10^{17}$ Bq an α -Strahlern und nicht mehr als 5×10^{18} Bq an β/γ -Strahlern in das Endlager Konrad eingelagert werden. Die angegebenen Aktivitätskonzentrationen beziehen sich auf das maximal endlagerbare Abfallvolumen von 303 000 m³. Im Hinblick auf den bestimmungsgemäßen Betrieb sowie mit Einschränkung auf die thermische Belastung des Wirtsgesteins dürfen einzelne Abfallgebinde diese Aktivitätskonzentration überschreiten, solange sichergestellt wird, dass zum Ausgleich auch Abfallgebinde mit niedriger Aktivitätskonzentration endgelagert werden. Die Erfassung von sicherheitstechnisch relevanten Radionukliden und die Bilanzierung ihrer Aktivitäten in den Abfallgebinden ist für den Ablieferungspflichtigen deshalb vorgeschrieben. Grundsätzlich sind die Aktivitäten der Radionuklide ³H, ¹⁴C, ¹²⁹I, ²²⁶Ra, ²³⁵U, ²³⁹Pu und ²⁴¹Pu in einem Abfallgebinde vom Ablieferungspflichtigen zu dekla-

²⁴ Brennecke, s. Anm. 18, Anhang II.

Tabelle 2.2: Maximal endlagerbare Aktivitäten *A* und mittlere Aktivitätskonzentrationen *A/V* relevanter Radionuklide und Radionuklidgruppen am Ende der Betriebsphase des Endlagers Konrad. Für die relevanten Radionuklide sind die Halbwertszeiten $T_{1/2}$ und die dominierenden Zerfallsmodi angegeben.

	$T_{1/2}$ [yr]	Zerfall	Maximalwerte	
			<i>A</i> [Bq]	<i>A/V</i> [Bq m ⁻³]
³ H	$1,23 \times 10^1$	β^-	$6,0 \times 10^{17}$	$1,9 \times 10^{12}$
¹⁴ C	$5,73 \times 10^3$	β^-	$4,0 \times 10^{14}$	$1,3 \times 10^9$
¹²⁹ I	$1,60 \times 10^7$	β^-	$7,0 \times 10^{11}$	$2,3 \times 10^6$
²²⁶ Ra	$0,58 \times 10^1$	α	$4,0 \times 10^{12}$	$1,3 \times 10^7$
²³² Th	$1,41 \times 10^{10}$	α	$5,0 \times 10^{11}$	$1,6 \times 10^6$
²³⁵ U	$7,04 \times 10^8$	α	$2,0 \times 10^{11}$	$6,6 \times 10^5$
²³⁶ U	$2,34 \times 10^7$	α	$1,0 \times 10^{12}$	$3,3 \times 10^6$
²³⁸ U	$4,47 \times 10^9$	α	$1,9 \times 10^{12}$	$6,2 \times 10^6$
²³⁹ Pu	$2,40 \times 10^4$	α	$2,0 \times 10^{15}$	$6,6 \times 10^9$
²⁴¹ Pu	$1,44 \times 10^1$	β^-	$2,0 \times 10^{17}$	$6,6 \times 10^{11}$
α -Strahler Gesamt:			$1,5 \times 10^{17}$	$4,9 \times 10^{11}$
β/γ -Strahler Gesamt:			$5,0 \times 10^{18}$	$1,6 \times 10^{13}$

rieren. Weitere Radionuklide, die aufgrund der Sicherheitsanalyse in ihren Aktivitäten je Abfallgebinde begrenzt sind, müssen erst deklariert werden, sofern sie 1 % der Grenzaktivitäten aus den jeweiligen Tabellen in den Endlagerungsbedingungen überschreiten.²⁵ Sollte ein Radionuklid in mehreren dieser Tabellen vertreten sein, so ist der restriktivste Wert einzuhalten. Ferner fordert das BfS auch bei einer Unterschreitung der zulässigen Deklarationsgrenzen, dass alle sicherheitstechnisch relevanten Radionuklide deklariert werden sollen, um mögliche Scheinaktivitäten in den jährlichen Bilanzierungen der eingelagerten Aktivitäten zu vermeiden. Scheinaktivitäten entstehen beispielsweise, wenn aufgrund konservativer Abschätzung für undeklarierte Radionuklide im Rahmen der jährlichen Bilanzierung ein Aktivitätswert angenommen wird, der höher ist, als die wirklich im Abfallgebinde vorhandenen Aktivitäten. Insgesamt werden in den Endlagerungsbedingungen Aktivitätsbegrenzungen für 190 Radionuklide eingeführt. In Abbildung 2.1 ist gezeigt, dass rund 71 % der deklarationspflichtigen Radionuklide β - beziehungsweise ϵ -Strahler²⁶ sind. Rund 22 % sind α -Strahler. Ein insgesamt kleiner Anteil an deklarationspflichtigen Radionukliden zerfällt durch spontane Spaltung oder regt sich durch interne Übergänge aus einem metastabilen Zustand in seinen Grundzustand ab. Im Hinblick auf die Auswahl geeigneter Messverfahren zur experimentellen radiologischen Charakterisierung ist hierbei wichtig, dass rund 62 % der Radionuklide in ihren Zerfällen zusätzlich eine charakteristische γ -Strahlung produzieren. Die 190 für das Endlager Konrad relevanten Radionuklide sind im Anhang A mit ihren physikalischen Kenndaten aufgelistet.

MASSENBEGRENZUNGEN NICHTRADIOAKTIVER SCHÄDLICHER STOFFE wie zum Beispiel von Schwermetallen müssen eingeführt werden, um wasserrechtliche Schutzziele einzuhalten.

2.3 Produktkontrolle von radiologischen Anforderungen

ZIEL DER PRODUKTKONTROLLE ist die Begutachtung der Endlagerfähigkeit von Abfallgebinden durch vom BfS benannte unabhängige Sachverständige. Das BfS hat dazu Richtlinien für die Produktkontrolle hinsichtlich radiologischer²⁷ und stofflicher²⁸ Aspekte herausgegeben. Die Endlagerfähigkeit wird zumeist in Rahmen von Entsorgungskampagnen bewertet. Der zentrale Schritt hierbei liegt in der Qualifizierung des Konditionierungsverfahrens durch die Sachverständigen. Hierzu hat sich das Ablaufplanverfahren als nützlich erwiesen. Das Ablaufplanverfahren kombiniert die sogenannte Verfahrensqualifikation mit festgelegten und begleitend durchzuführenden Stichprobenprüfungen an Rohabfällen, Zwischenprodukten und Abfallprodukten. Unter Stichprobenprüfungen im radiologischen Sinne versteht man zum Beispiel die experimentelle Überprüfung der Ortsdosisleistungen, der Flächenkontaminationen und der radionuklidspezifischen

²⁵ Ebd., Anhang II.

²⁶ Strahlung nach Elektroneneinfang (auch inverser β -Zerfall genannt).

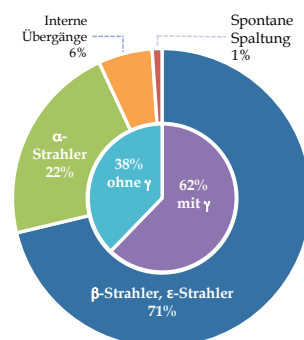


Abbildung 2.1: Zerfallsmodi der 190 Radionuklide, die für die Endlagerung von radioaktiven Abfällen in Konrad deklarationspflichtig sind. Das innere Diagramm zeigt den Anteil an Radionukliden, die unabhängig vom Zerfallsmodi mit γ -Strahlung assoziiert werden können.

²⁷ S. Steyer. Produktkontrolle radioaktiver Abfälle, radiologische Aspekte. Techn. Ber. Salzgeber: Bundesamt für Strahlenschutz, 2010.

²⁸ S. Steyer. Produktkontrolle radioaktiver Abfälle, stoffliche Aspekte. Techn. Ber. Salzgeber: Bundesamt für Strahlenschutz, 2010.

Aktivitäten an nach einem definierten Losverfahren auszuwählenden Abfallprodukten oder Abfallgebinden. Im Rahmen einer Vorprüfung wird bewertet, ob Abfallgebinde, die gemäß des Ablaufplanes konditioniert wurden, eine Endlagerfähigkeit erwarten lassen. Das BfS entscheidet dann auf Grundlage einer gutachterlichen Verfahrensbeurteilung, ob der Ablaufplan freigegeben werden kann. Das BfS gibt die Abfälle anschließend zur Endlagerung frei, falls die an den Abfällen durchgeführten experimentellen Untersuchungen, die bei der Konditionierung durchgeführten Kontrollmaßnahmen und die Endlagerdokumentation des Abfallgebundes die Einhaltung der Endlagerungsbedingungen bestätigen. Abfälle aus nicht qualifizierten Konditionierungsverfahren müssen im Rahmen einer Nachqualifizierung begutachtet werden. Dies trifft beispielsweise auf die Abfälle in den Landessammelstellen, aber auch auf große Abfallkontingente in den Zwischenlagern der Kernkraftwerke beziehungsweise der Energieversorger zu. Die Sachverständigen beurteilen dabei die Endlagerfähigkeit anhand der Endlagerdokumentation und durch Stichprobenprüfungen. Bei Abfällen aus nicht qualifizierten Verfahren sind die Stichprobenprüfungen nach Forderung des BfS möglichst an den Abfallfässern nach einem vorgegebenen statistischen Verfahren durchzuführen. Abfallprodukte, die nicht in Abfallfässer verpackt werden, sollen nur in qualifizierten Konditionierungsverfahren produziert werden.

2.4 Notwendigkeit der experimentellen radiologischen Charakterisierung

AUS DEN ENDLAGERUNGSBEDINGUNGEN wird die Notwendigkeit der Erfassung und Bilanzierung von relevanten Radionukliden beziehungsweise Radionuklidgruppen deutlich. Zu diesem Zweck werden experimentelle Methoden zur Identifizierung von Radionukliden und zur Quantifizierung ihrer Aktivitäten benötigt. Die Identifizierung der Radionuklide und die Quantifizierung des radionuklidspezifischen Aktivitätsinventars werden unter dem Deckbegriff der radiologischen Charakterisierung zusammengefasst. Im Rahmen des Ablaufplans in einem qualifizierten Konditionierungsverfahren wird die experimentelle radiologische Charakterisierung sowohl zur Deklaration des radionuklidspezifischen Aktivitätsinventars als auch zur Kontrolle des Verfahrens durch festgeschriebene Stichprobenprüfungen eingesetzt. Bei Abfällen aus nicht qualifizierten Konditionierungsverfahren haben unabhängige Sachverständige im Rahmen der Produktkontrolle, wie in Abschnitt 2.3 beschrieben, zudem die Möglichkeit Stichprobenprüfungen an den Abfallfässern durchzuführen. Die Genauigkeit und Verlässlichkeit der experimentellen Methoden ist hinsichtlich der Einhaltung der Endlagerungsbedingungen und der Minimierung von Scheinaktivitäten von zentraler Bedeutung. Bei unzuverlässigen Messverfahren werden aus Sicherheitsgründen konservative Abschätzungen der radionuklidspezifischen Aktivitäten durchgeführt. Dies

führt meistens zu einer deutlichen Überschätzung des wahren Aktivitätsinventars. So entstehen Scheinaktivitäten nicht nur bei der in Abschnitt 2.2 beschriebenen jährlichen Bilanzierungen, sondern auch bei einer ungenauen und unzuverlässigen experimentellen radiologischen Charakterisierung. Scheinaktivitäten führen unter zwei wesentlichen Gesichtspunkten zu Problemen.

Optimale Ausnutzung der Endlagerkapazität: Die Endlagerkapazität des Endlagers Konrad ist zum einen durch das maximal einlagerbare Abfallvolumen von $303\,000\text{ m}^3$ und zum anderen durch die maximal einlagerbaren Aktivitäten am Ende der Betriebsphase nach Tabelle 2.2 begrenzt. Scheinaktivitäten können dazu führen, dass die Endlagerbegrenzung hinsichtlich der Aktivitätsbegrenzungen deutlich vor der Volumenbegrenzung ausgenutzt wird. Dies führt im schlimmsten Fall dazu, dass nicht alle in der Bundesrepublik Deutschland endzulagernden vernachlässigbar wärmeentwickelnden radioaktiven Abfälle in das Endlager eingebracht werden können.

Kostenminimierung für den Ablieferungspflichtigen: Die Kosten eines Ablieferungspflichtigen für die Endlagerung von radioaktiven Abfällen im Endlager Konrad hängen letztendlich vom Volumen der Abfälle beziehungsweise von der Anzahl der Abfallgebinde ab. Das BfS beziffert die Endlagerungskosten mit Stand vom 19.10.2012 auf aktuell $17\,500\text{ €/m}^3$ Abfallgebindevolumen, wobei weitere Erhöhungen nicht ausgeschlossen sind. Bei hohen Scheinaktivitäten muss ein Abfallkontingent auf mehr Abfallgebinde als notwendig aufgeteilt werden, um Aktivitätsbegrenzungen für Abfallgebinde gemäß Abschnitt 2.2 einzuhalten. Dies führt zwangsläufig zu einem größeren Abfallvolumen und somit zu höheren Endlagerungskosten für den Ablieferungspflichtigen.

3

Grundlagen der zerstörungsfreien Charakterisierung von Abfallfässern

INHALT:

3.1	Zerstörende und zerstörungsfreie Messverfahren	20
3.2	Reichweite von α - und β -Strahlung in Materie	22
3.3	Wechselwirkung von γ -Strahlung in Materie	23
3.4	Abschwächung von γ -Strahlung	28
3.5	γ -spektrometrische Messsysteme	30
3.6	Schlüsselnuklide und Skalierungsverfahren	34

3.1 Zerstörende und zerstörungsfreie Messverfahren

DIE IN DER BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND angewandten zerstörenden und zerstörungsfreien Messverfahren für die radiologische Charakterisierung von Abfallfässern sowie die Freimessverfahren für Reststoffe aus der Stilllegung von kerntechnischen Anlagen wurden im MESRAB-Bericht des Lehrstuhls für Werkstoffchemie von der RWTH Aachen aus dem Jahr 2006 zusammengefasst.²⁹ Im MESRAB-Bericht werden die Grundlagen der angewandten Messverfahren erklärt und die Messsysteme der deutschen Forschungseinrichtungen beziehungsweise der kerntechnischen Industrie vorgestellt. Der MESRAB-Bericht bildet die Grundlage für die folgende Zusammenfassung von zerstörenden und zerstörungsfreien Messverfahren.

²⁹ E. Mauerhofer und R. Odoj. *Messmethoden zur Charakterisierung radioaktiver Abfälle und zur Freimessung von Reststoffen aus der Stilllegung kerntechnischer Anlagen*. Techn. Ber. Aachen: RWTH Aachen, 2006.

BEI DER ZERSTÖRENDEN CHARAKTERISIERUNG von radioaktiven Abfallfässern werden eine oder mehrere Proben aus der Abfallmatrix entnommen und anschließend radiologisch charakterisiert. Um Rückschlüsse auf die radiologische Beschaffenheit der gesamten Abfallmatrix ziehen zu können, muss sichergestellt werden, dass sowohl die Matrix- als auch die Radionuklidzusammensetzung der entnommenen Probe repräsentativ für die gesamte Abfallmatrix ist. Durch zerstörungsfreie Vormessungen auf der Basis der Transmissionstomographie (TCT), der Emissionscomputertomographie (ECT)³⁰ und der γ -Spektrometrie, können Bereiche der Abfallmatrix mit einer ähnlichen Matrix- und Radionuklidzusammensetzung identifiziert werden. Auf der Basis dieser Daten können die Anzahl der zu entnehmenden Proben und die Bereiche für die Probenahme in der Abfallmatrix definiert werden. In der Regel ist es notwendig, zwischen einer und vier Proben aus der Abfallmatrix zu entnehmen, um eine Repräsentativität für die gesamte Abfallmatrix sicher zu stellen.³¹ Im Falle von stark heterogenen Abfällen kann allerdings auch bei einer großen Anzahl an entnommenen Proben keine Repräsentativität garantiert werden. Die Beprobung der Abfallmatrix erfolgt durch eine Bohrkernentnahme in einer Trockenbohranlage. Die entnommenen Bohrkernkerne müssen anschließend für die weitergehende radiologische Charakterisierung zu analysierbaren Proben chemisch vorbereitet werden. Zu diesen Vorbereitungsschritten gehören beispielsweise das Zermahlen sowie das Homogenisieren, der Aufschluss und die chemische Abtrennung. In Tabelle 3.1 sind die analytischen Messverfahren, die zur radiologischen Charakterisierung der vorbereiteten Proben angewandt werden, mit den benötigten Messzeiten der jeweiligen Verfahren zusammengefasst.³² Die benötigte Zeit für die Vormessungen sowie die Probenentnahme, -vorbereitung und -aufbereitung sind bei den angegebenen Messzeiten nicht mit inbegriffen und können bis zu zwei Tage in Anspruch nehmen. Daraus und aus den in Tabelle 3.1 angegebenen Messzeiten ist zu erkennen, dass eine umfassende zerstörende radiologische Charakterisierung eines Abfallfasses bis hin zu einigen Wochen dauern kann. Deshalb ist die Zeit- und die damit

³⁰ P. Eifler. "Entwicklung und Bau einer Tomographieanlage für Routinemessungen an radioaktiven Abfallfässern zur Qualitätskontrolle". Diss. RWTH Aachen, 1995; R. Odoj und P. Eifler. *Construction and testing of a computer tomography assembly for routine operation*. Techn. Ber. Luxembourg: Europäische Kommission, 1998.

³¹ siehe: Mauerhofer und Odoj, s. Anm. 29, Abschnitt 4.1.

³² siehe: Ebd., Abbildung 5.6.

verbundene Kostenintensivität für eine zerstörende radiologische Charakterisierung ihr größter Nachteil, obgleich unter der Voraussetzung der Repräsentativität der Probe die verlässlichsten Messergebnisse zu erwarten sind. Ein weiterer Nachteil von zerstörenden Verfahren ist die Entstehung von Sekundärabfällen. Die Überreste aus der Probenaufbereitung und von der Bohrkernentnahme, sowie die Proben selber dürfen nicht wieder in das untersuchte Abfallfass eingebracht werden, sondern müssen neu konditioniert werden. Zuletzt ist die zusätzliche Strahlenexposition beziehungsweise die Inkorporationsgefahr von radioaktiven und chemotoxischen Substanzen für das Betriebspersonal bei der Durchführung von zerstörenden Messverfahren aus Sicht des Strahlen- und Arbeitsschutzes nachteilig.

BEI DER ZERSTÖRUNGSFREIEN CHARAKTERISIERUNG wird das Abfallfass vermessen, ohne seine Integrität zu verletzen. Es gibt dabei grundsätzlich drei verschiedene Anwendungsbereiche von zerstörungsfreien Charakterisierungsverfahren für radioaktive Abfallfässer. Dies sind die radiologische Charakterisierung, die Charakterisierung der Radionuklid- und Matrixverteilung, sowie die Charakterisierung der stofflichen Zusammensetzung der Matrix. Zerstörungsfreie Messverfahren zur radiologischen Charakterisierung basieren auf γ -spektrometrischen Messungen³³ oder Neutronen-Messungen.³⁴ Die zerstörungsfreie Charakterisierung auf der Basis von reinen α - beziehungsweise β -Strahlern ist nicht möglich, da diese komplett durch die Abfallmatrix abgeschirmt werden, wie es in Abschnitt 3.2 gezeigt wird. Durch Neutronen-Messungen lassen sich sowohl Rückschlüsse auf Spaltmaterialien als auch auf Spontanspalter ziehen. Diese Radionuklide machen allerdings nur einen kleinen Teil der deklarationspflichtigen Radionuklide für das Endlager Konrad aus, wie es in Abbildung 2.1 gezeigt wurde. Neutronen-Messungen werden daher in dieser Arbeit nicht weiter beschrieben und für weitere Details wird auf die entsprechende Referenz verwiesen. Mit rund 62 % ist der größte Anteil an deklarationspflichtigen Radionukliden mit γ -Strahlung assoziiert. Die γ -Spektrometrie ist daher die Grundlage für die meisten der zerstörungsfreien Messverfahren zur radiologischen Charakterisierung von Abfallfässern. Bei der Anwendung von γ -spektrometrischen Messverfahren ist das Selbstabsorptionsverhalten der γ -Strahlung in der Abfallmatrix von zentraler Bedeutung. Die physikalischen Grundlagen für die Wechselwirkung von γ -Strahlung mit Materie werden in den Abschnitten 3.3 und 3.4 behandelt. Die Grundlagen für die Detektion von γ -Strahlung wird im Abschnitt 3.5 zusammengefasst. Um die Genauigkeit von γ -spektrometrischen Verfahren zu verbessern, können sie mit Transmissionsmessungen durch eine externe Strahlungsquelle kombiniert werden. Durch die Transmissionskorrektur kann eine a priori unbekannte heterogene Matrixverteilung zumindest teilweise in den Berechnungen zur Selbstabsorption berücksichtigt werden. Im Falle einer stark heterogenen Abfallmatrix, müssen dann die bildgebenden Verfahren ECT, zur Charakterisierung der Radionuklidverteilung, und TCT, zur Charakteri-

Verfahren	Messzeit
γ -Spektrometrie	1 h - 24 h
Röntgen-Spektrometrie	1 h - 12 h
α -Spektrometrie	1 h - 12 d
β -Spektrometrie (LSC)	1 h - 8 h
Massenspektrometrie	10 min
Aktivierungs-Analyse	1 d - 15 d

Tabelle 3.1: Analyseverfahren und deren Messzeiten für die zerstörende Charakterisierung von Abfallfässern (siehe MESRAB-Bericht). Die Messzeiten beziehen sich auf die reine Messung ohne Probenvorbereitung. LSC steht für Liquid Scintillation Counting.

³³ H.-J. Sanden u. a. *Optimisation of Gamma Assay Techniques for the Standard Quality Checking of Nuclear Waste Packages and Samples*. Techn. Ber. European Commission, 1999; G. Caspary und H.-J. Sanden. "Optimisation of Gamma Assay Techniques for the Quality Checking of Radioactive Waste Packages". In: *Non-Destructive Analyses for the Quality Checkings of Radioactive Waste Packages*. Hrsg. von L.P.M. van Velzen. Arnheim: EN-TRAP, 2002.

³⁴ T. Bücherl u. a. *Improvement of Passive and Active Neutron Assay Techniques for the Characterisation of Radioactive Waste Packages*. Techn. Ber. Luxembourg: Europäische Kommission, 1999.

³⁵ E. Mauerhofer und J. Kettler. "Neutron activation analysis using standardized sample container for determining the neutron flux". Patent WO/2012/10162 (DE). 26. Jan. 2012; J. Kettler. "Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse zur zerstörungsfreien Charakterisierung radioaktiver Abfälle". Diss. RWTH Aachen, 2010; J.-L. Ma u. a. "Prompt gamma neutron activation analysis of toxic elements in radioactive waste packages." In: *Applied Radiation and Isotopes* 70.7 (Juli 2012), S. 1261–3; A. Havenith, J. Kettler und E. Mauerhofer. "Zyklische Neutronen-Aktivierung zur zerstörungsfreien Charakterisierung radioaktiver Abfälle". In: *Jahrestagung Kerntechnik*. Berlin, 2012; E. Mauerhofer u. a. "Quantitative comparison between PGNA measurements and MCNP calculations in view of the characterization of radioactive wastes in Germany and France". en. In: *AIP Conference Proceedings*. Bd. 1525. 1. AIP Publishing LLC, Apr. 2013, S. 432–435.

³⁶ International Atomic Energy Agency. *Strategy and Methodology for Radioactive Waste Characterization*. Techn. Ber. Wien: Waste Technology Section, 2007.

sierung der Matrixverteilung, angewandt werden. Das Problem der bildgebenden Messverfahren sind die langen Messzeiten jenseits von 8 h pro Messung, die den Routineeinsatz dieser Verfahren mit einem hohen Durchsatz an Abfallfässern nahezu unmöglich machen. Messverfahren zur stofflichen Charakterisierung von Abfallfässern, vor allem im Hinblick auf chemotoxische Elemente, sind zurzeit noch nicht etabliert. Mit der MEDINA Anlage befindet sich allerdings eine Testanlage basierend auf der Neutronenaktivierungsanalyse in Forschung und Entwicklung.³⁵ Grundsätzlich bieten zerstörungsfreie Messverfahren im Gegensatz zu zerstörenden Messverfahren durch den geringeren Zeitaufwand der Messung von in der Regeln ca. 1 h bis 2 h die Möglichkeit eines hohen Durchsatzes an Abfallfässern. Aufgrund der vergleichsweise einfachen Messverfahren wird zudem die Möglichkeit einer hohen Automatisierung der Messungen geboten, was gerade im Hinblick auf die Kosten ein großer Vorteil ist. Nachteilig ist, dass die Analyse und die Interpretation der Ergebnisse deutlich komplexer als bei zerstörenden Messverfahren ist und eines tiefgehenden Verständnisses über die Analysemethode und die physikalischen Prozesse sowie einer Reihe von Informationen über den Abfallstrom und die Konditionierung des Abfallfasses bedarf.³⁶ Letzteres ist vor allem dann von besonderer Wichtigkeit, wenn aus den Messungen von γ -emittierenden Radionukliden auf α - und β -Strahler geschlossen wird, wie es in Abschnitt 3.6 erläutert wird. Aufgrund ihrer Zeit- und Kostenextensivität, der Vermeidung von Sekundärabfällen und der Vermeidung von zusätzlichen Strahlenbelastungen sowie Inkorporationsgefahren für das Betriebspersonal, werden zerstörungsfreie Messverfahren gegenüber zerstörenden Messverfahren bevorzugt, solange eine ausreichende Genauigkeit der Messergebnisse zu erwarten ist.

3.2 Reichweite von α - und β -Strahlung in Materie

DIE REICHWEITE VON α - UND β -STRAHLUNG IN MATERIE ist durch ihr starkes Ionisationspotential begrenzt. Aufgrund ihrer elektrischen Ladung und dem damit verbundenen Coulombpotential sind sie in der Lage, Atome direkt zu ionisieren. Die sogenannte direkt ionisierende Strahlung wechselwirkt mit Materie durch folgende Prozesse:

- Anregung von Hüllenelektronen oder Ionisation der Atome.
- Elastische Stöße mit den Elektronen aus der Atomhülle.
- Ablenkung im Coulomb-Feld der Atomkerne und der damit entstehenden Bremsstrahlung.
- Elastische Stöße mit Atomkernen, bei denen der Kern einen Rückstoß erhält.
- Inelastische Stöße beziehungsweise Kernreaktionen.
- Erzeugung von Tscherenkov-Strahlung.

Der spezifische Energieverlust dE/dx von direkt ionisierender Strahlung, kann gemäß dem Model von Bethe berechnet werden.³⁷ Die mittlere Reichweite von α -Teilchen bei einer Energie E_α in einem beliebigen Medium mit der atomaren Masse m und der Dichte ρ lässt sich gemäß des semi-empirischen Geigerschen Reichweitengesetzes und der Bragg-Kleeman Regel zu

$$R_\alpha = k \cdot \frac{\sqrt{m}}{\rho} \cdot \left(\frac{E_\alpha}{\text{MeV}} \right)^{\frac{3}{2}} \quad (3.1)$$

mit

$$k = 1,024 \times 10^{-4} \text{ cm}^{-2} \text{ g}^{0,5} \text{ mol}^{0,5} \quad (3.2)$$

berechnen. Die Konstante k ist eine Normierung, basierend auf der Reichweite von α -Strahlung in Luft. Die maximale Reichweite von Elektronen (β -Strahlung) in Materie kann durch die empirische Formel³⁸

$$R_\beta = \frac{1}{\rho} \cdot \begin{cases} 0,412 \text{ g cm}^{-2} \cdot \left(\frac{E_\beta}{\text{MeV}} \right)^a, & \frac{E_\beta}{\text{MeV}} \leq 2,5 \\ 0,530 \text{ g cm}^{-2} \cdot \frac{E_\beta}{\text{MeV}} - 0,106 \text{ g cm}^{-2}, & \frac{E_\beta}{\text{MeV}} > 2,5 \end{cases} \quad (3.3)$$

mit

$$a = 1,265 - 0,0954 \cdot \ln \left(\frac{E_\beta}{\text{MeV}} \right) \quad (3.4)$$

berechnet werden. Basierend auf den Gleichungen (3.1) und (3.3) ist die Reichweite von α -Teilchen beziehungsweise Elektronen in Aluminium mit einer Dichte von $2,7 \text{ g cm}^{-3}$ und einer atomaren Masse von $26,98 \text{ g mol}^{-1}$ als Funktion der Energie in Abbildung 3.1 gezeigt. Die Reichweite von α -Teilchen ist unabhängig von der Energie um fast drei Größenordnungen geringer, als die Reichweite von Elektronen in Aluminium. Dies ist mit dem deutlich größeren Ionisationspotential zu erklären, welches die α -Teilchen aufgrund ihrer größeren Masse und Ladung besitzen. Die Reichweite von Elektronen in Aluminium beträgt selbst bei einer Energie von 4 MeV noch weniger als 1 cm . Aufgrund dieser kurzen Reichweiten von α - und β -Strahlung in Materie, werden sie nahezu komplett in der Abfallmatrix eines Abfallfasses absorbiert. Die α - und die β -Spektrometrie sind daher nicht für den Einsatz im Rahmen zerstörungsfreier Messverfahren zur radiologischen Charakterisierung von Abfallfässern geeignet.

3.3 Wechselwirkung von γ -Strahlung in Materie

INDIREKT IONISIERENDE STRAHLUNG, wie beispielsweise γ -Strahlung (Photonen) oder Neutronen-Strahlung, zeichnet sich durch ihre elektrische Neutralität aus. So ist sie nicht in der Lage Atome, direkt zu ionisieren. Dies führt im Vergleich zu direkt ionisierender Strahlung zu einem deutlich geringerem spezifischen Energieverlust und gleichzeitig zu einer deutlich größeren Reichweite der Strahlung in Materie. Die γ -Spektrometrie bietet sich daher als Standardverfahren im Rahmen der zerstörungsfreien radiologischen Charakterisierung

³⁷ H.A. Bethe. "Zur Theorie des Durchganges schneller Korpuskularstrahlung durch Materie". In: *Annals of Physics* 5.325 (1930).

³⁸ L. Katz und A. Penfold. "Range-Energy Relations for Electrons and the Determination of Beta-Ray End-Point Energies by Absorption". In: *Reviews of Modern Physics* 24.1 (Jan. 1952), S. 28–44.

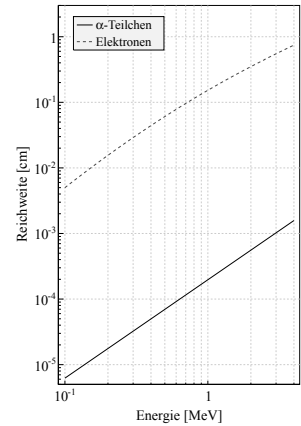


Abbildung 3.1: Reichweite von α -Teilchen und Elektronen in Aluminium als Funktion der Energie.

an. Die Wechselwirkung von Photonen mit Materie sind durch die folgende Prozesse dominiert:

- Rayleigh-, Thomson und Raman-Streuung.
- Photoeffekt und Kernphotoeffekt.
- Compton-Streuung.
- Paarbildung.

UNTER DER RAYLEIGH- UND THOMSON-STREUUNG versteht man die elastische Streuung von elektromagnetischen Wellen an gebundenen und quasi-freien Elektronen. Die Raman-Streuung beschreibt die inelastische Streuung von elektromagnetischen Wellen an Atomen oder Molekülen. Die Atome und Moleküle werden durch die einfallende elektromagnetische Welle zu Rotationen und Schwingungen, beziehungsweise der Festkörper zu Gitterschwingungen angeregt. Diese drei Effekte sind vor allem im optischen Bereich bei sehr niedrigen Photonenergien wichtig und spielen in der γ -Spektrometrie ab wenigen keV bereits keine Rolle mehr.

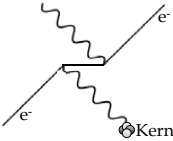


Abbildung 3.2: Feynman-Diagramm für den Photoeffekt.

BEIM PHOTOEFFEKT wird ein einfallendes Photon von einem Hüllenelektron e_H^- komplett absorbiert und das Elektron wird aus der Atomhülle gemäß

$$\gamma + e_H^- \rightarrow \gamma_{\text{Kern}} + e^- \quad (3.5)$$

herausgelöst. Die gesamte Energie des einfallenden Photons wird dabei auf das Hüllenelektron übertragen. Aus Gründen der Energie- und Impulserhaltung, muss ein kleiner Impulsübertrag auch auf den Kern stattfinden, wie im Feynman-Diagramm in Abbildung 3.2 gezeigt. Aufgrund des benötigten Impulsübertrages auf den Kern, kann der Photoeffekt nicht mit freien Elektronen stattfinden. Damit das Hüllenelektron aus der Atomhülle herausgelöst werden kann, muss die Energie des einfallenden Photons mindestens so groß wie die Bindungsenergie des Hüllenelektrons an den Atomkern sein. Die Bindungsenergie der Hüllenelektronen an den Atomkern wächst mit steigender Kernladungszahl Z und zunehmender Kernnähe. Für die K-, L- und M-Schalen kann die Bindungsenergie zu

$$\text{K-Schale} \quad E_K = Rhc \cdot (Z - 1)^2, \quad (3.6)$$

$$\text{L-Schale} \quad E_L = \frac{1}{4} Rhc \cdot (Z - 5)^2, \quad (3.7)$$

$$\text{M-Schale} \quad E_M = \frac{1}{9} Rhc \cdot (Z - 13)^2 \quad (3.8)$$

bestimmt werden. Dabei ist R die Rydberg-Konstante, h ist das Plank'sche Wirkungsquantum und c ist die Vakuumlichtgeschwindigkeit. Die Bindungsenergien befinden sich typischerweise im Bereich einiger eV. Ist die Energie des einfallenden Photons E_γ größer als die Bindungsenergie, so wird der überschüssige Anteil gemäß

$$E_e = E_\gamma - E_B \quad (3.9)$$

in kinetische Energie E_e des nunmehr freien Elektrons umgewandelt. Sobald die Energie des einfallenden Photons die Bindungsenergie der Hüllenelektronen in der K-Schale überschreitet, finden ca. 80 % der Absorptionseffekte in der K-Schale statt. Nach dem Auslösen eines Elektrons aus der K-Schale, befindet sich das Atom, sofern auch höhere Schalen mit Elektronen besetzt sind, in einem angeregten Zustand. Die Löcher in der K-Schale werden durch Hüllenelektronen aus den höheren Schalen aufgefüllt. Die freiwerdende Bindungsenergie wird bei diesem Übergang in Röntgenstrahlung umgewandelt. Mit einer geringen Wahrscheinlichkeit kann die entstandene Röntgenstrahlung ein Elektron einer höheren Schale des selben Atoms auslösen. Dieser Übergang eines Elektrons aus einer äußeren Schale auf das K-Niveau gilt als strahlungslos, weil von außen keine Röntgenemission wahrzunehmen ist. Das ausgelöste Elektron wird als Auger-Elektron bezeichnet. Beide Effekte sind schematisch in Abbildung 3.3 gezeigt. Der Wirkungsquerschnitt für den Photoeffekt ist immer dann besonders groß, wenn die Photonenergie genau der Bindungsenergie der Hüllenelektronen in einer bestimmten Schale entspricht. Man spricht bei diesen Energien von Absorptionskanten im Wirkungsquerschnitt. Generell lässt sich der Wirkungsquerschnitt für den Photoeffekt σ_{ph} bei Photonenergien oberhalb der K-Kante eines Materiales durch die Proportionalität

$$\sigma_{ph} \propto Z^5 \cdot E_\gamma^\delta \quad (3.10)$$

und

$$\delta = 1 \quad \text{für} \quad E_\gamma > m_e c^2, \quad (3.11)$$

$$\delta = 3.5 \quad \text{für} \quad E_\gamma < m_e c^2 \quad (3.12)$$

mit der Ruheenergie eines Elektrons $m_e c^2 = 511 \text{ keV}$ beschreiben. Die starke Abhängigkeit von der Kernladungszahl Z ist mit der damit verbundenen höheren Elektronendichte im Material zu erklären. Das einfallende Photon trifft bei einer hohen Elektronendichte leichter auf ein Elektron, um über den Photoeffekt absorbiert zu werden. Der Photoeffekt kann zusätzlich auch mit einem Atomkern stattfinden, was man als Kernphotoeffekt bezeichnet. Hierbei wird je nach Reaktion ein Neutron oder ein Proton aus der Kernstruktur herausgelöst. In der Notation von Kernreaktion spricht man von (γ, n) - und (γ, p) -Reaktionen. Die Energie des einfallenden Photons muss dazu mindestens der Bindungsenergie des am schwächsten gebundenen Nukleons entsprechen. Diese Energie liegt typischerweise im Bereich von 1 MeV bis 9 MeV. Für die (γ, n) -Reaktion an Deuterium



ist beispielsweise eine Schwellenenergie von 2,225 MeV notwendig. Der Kernphotoeffekt ist allerdings im Gegensatz zu den anderen Wechselwirkungen von Photonen mit Materie deutlich unterdrückt und nur im hochenergetischen Bereich relevant.

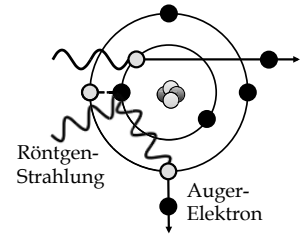
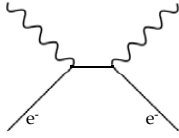
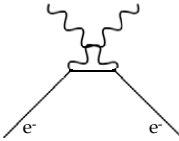


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung zu der Produktion von Röntgenstrahlung oder Auger-Elektronen beim Photoeffekt.



(a) s-Kanal



(b) u-Kanal

Abbildung 3.4: Feynman-Diagramm für die Compton-Streuung.

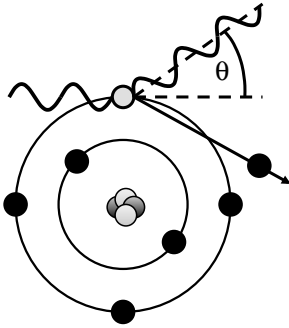


Abbildung 3.5: Schematische Zeichnung des Kinematik bei der Compton-Streuung.

BEI DER COMPTON-STREUUNG gibt das einfallende Photon im Vergleich zum Photoeffekt nur einen Teil seiner Energie an ein leichtgebundenes (quasi-freies) oder freies Elektron ab

$$\gamma + e^- \rightarrow \gamma + e^- . \quad (3.14)$$

Die zugehörigen Feynman-Diagramme sind in Abbildung 3.4 gezeigt. In diesem Kontext bedeutet quasi-frei, dass die Bindungsenergie des Elektrons an seinen Atomkern deutlich geringer ist als die Energie des einfallenden Photons. Die Compton-Streuung wird häufig als inelastische Streuung bezeichnet, da sich die Energie des Photons nach dem Stoß verändert hat. Abbildung 3.5 zeigt eine schematische Darstellung der Compton-Streuung an einem quasi-freien Elektron. Das Photon ist nach der Streuung um den Winkel θ von seiner ursprünglichen Trajektorie abgelenkt. Gemäß der Viererimpulserhaltung ergibt sich die kinetische Energie des gestreuten Photons E'_γ und des Compton-Elektrons E'_e zu

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \kappa (1 - \cos(\theta))} , \quad (3.15)$$

$$E'_e = E_\gamma \cdot \frac{\kappa (1 - \cos(\theta))}{1 + \kappa (1 - \cos(\theta))} \quad (3.16)$$

mit

$$\kappa = \frac{E_\gamma}{m_e c^2} . \quad (3.17)$$

Das einfallende Photon erleidet den größten Energieverlust, wenn es rückwärts unter einem Streuwinkel von 180° gestreut wird. Die minimale Energie des gestreuten Photons lässt sich dann gemäß Gleichung (3.15) zu

$$E'_{\gamma, \min} = \frac{E_\gamma}{1 + 2\kappa} \quad (3.18)$$

berechnen. Bei einem Streuwinkel von 0° erfolgt kein Energieübertrag vom einfallenden Photon auf das Elektron. Die Energie des gestreuten Photons variiert somit auf einem großen Energiebereich zwischen E_γ und $E'_{\gamma, \min}$. Aus dieser Überlegung lässt sich ebenfalls ableiten, dass das Elektron bei einer Vorwärtsstreuung keinen Energieübertrag erfährt und somit $E_e = 0$ ist. Bei einer Rückwärtsstreuung erhält das Elektron den maximalen Energieübertrag und seine kinetische Energie kann zu

$$E'_{e, \max} = \frac{2\kappa E_\gamma}{1 + 2\kappa} \quad (3.19)$$

bestimmt werden. Ist die Energie des einfallenden Photons deutlich größer als die Ruheenergie des Elektrons ($E_\gamma \gg m_e c^2$), so lässt sich der Wirkungsquerschnitt für die Compton-Streuung an einem quasi-freien Elektron durch die Klein-Nishina-Formel³⁹

$$\sigma_{co}^e = 2\pi r_e^2 \cdot \left[\frac{1 + \kappa}{\kappa^2} \cdot \left(\frac{2 \cdot (1 + \kappa)}{1 + 2\kappa} - \frac{1}{\kappa} \ln(1 + 2\kappa) \right) + \frac{1}{2\kappa} \ln(1 + 2\kappa) - \frac{1 + 3\kappa}{(1 + 2\kappa)^2} \right] \quad (3.20)$$

mit dem klassischen Elektronenradius r_e bestimmen. Bezieht man den Wirkungsquerschnitt auf ein bestimmtes Atom und entwickelt

³⁹ O. Klein und T. Nishina. "Über die Streuung von Strahlung durch freie Elektronen nach der neuen relativistischen Quantendynamik von Dirac". German. In: *Zeitschrift für Physik* 52.11-12 (1929), S. 853–868.

Gleichung (3.20) unter der Bedingung $\kappa \gg 1$, so ergibt sich der atomare Wirkungsquerschnitt für die Compton-Streuung zu

$$\sigma_{co} \approx \frac{\pi r_e^2 Z}{\kappa} \left[\ln(2\kappa) + \frac{1}{2} \right] \quad (3.21)$$

$$\sigma_{co} \propto \frac{Z}{E_\gamma}. \quad (3.22)$$

Ist die Energie des einfallenden Photons klein ($E_\gamma \ll m_e c^2$), so geht der Compton-Wirkungsquerschnitt in den Thomson-Wirkungsquerschnitt

$$\sigma_{th} = \frac{8}{3} \pi \cdot r_e^2 \quad (3.23)$$

über.

DIE PAARBILDUNG beschreibt die Produktion eines Elektron-Positron Paares durch ein einfallendes Photon im Coulombpotential eines Atomkerns

$$\gamma + \gamma_{Kern} \rightarrow e^+ + e^-. \quad (3.24)$$

Abbildung 3.6 zeigt das Feynman-Diagramm zur Paarbildung. Zur Einhaltung des Energie- und Impulserhaltungssatzes muss ein kleiner Impulsübertrag auf den Atomkern stattfinden. Aufgrund der vergleichsweise großen Masse des Kerns erfährt er allerdings praktisch keinen Rückstoß. Die Paarbildung kann zudem erst stattfinden, wenn die Energie des einfallenden Photons größer ist, als die Ruheenergie eines Elektron-Positron Paares von $2m_e c^2 = 1022 \text{ keV}$. Überschüssige Energie teilt sich gemäß

$$E_{e^-} + E_{e^+} = E_\gamma - 2m_e c^2 \quad (3.25)$$

in kinetische Energie des Elektrons E_{e^-} und des Positrons E_{e^+} auf. Mit deutlich geringerer Wahrscheinlichkeit kann die Paarbildung auch im Coulomb-Potential eines Hüllenelektrons stattfinden. Da das Hüllenelektron aufgrund des nötigen Impulsübertrages durch das einfallende Photon aus der Atomhülle ausgelöst wird, befinden sich insgesamt zwei Elektronen und ein Positron im Endzustand der Streuung. Man spricht deshalb von einer Triplettbildung. Dieser Vorgang ist im Gegensatz zur Paarbildung im Kernpotential stark unterdrückt. Die Schwellenenergie für die Triplettbildung ist $4m_e c^2 = 2044 \text{ keV}$. Die Paarbildung ist unmittelbar von der Annihilation des entstehenden Positrons gefolgt. Bei der Annihilation eines Positrons mit einem Elektron aus den umliegenden Atomen entstehen zwei Photonen mit entgegengesetzten Impulsen und mit jeweils der Ruheenergie eines Elektrons beziehungsweise Positrons. Gemäß dem Model von Bethe und Heitler,⁴⁰ kann der atomare Wirkungsquerschnitt für die Paarproduktion durch

$$\sigma_{pa} \approx \alpha Z^2 r_e^2 \ln(E_\gamma) \quad (3.26)$$

mit der Feinstrukturkonstante α berechnet werden.

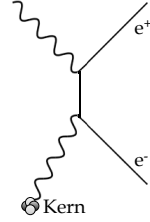
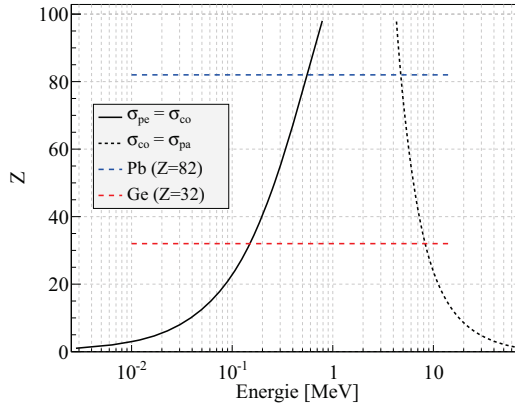


Abbildung 3.6: Feynman-Diagramm für die Paarbildung im Kernpotential.

⁴⁰ H.A. Bethe und W. Heitler. "On the Stopping of Fast Particles and on the Creation of Positive Electrons". In: *Proceedings of the Royal Society of London. Series A* 146.856 (Aug. 1934), S. 83–112.

Abbildung 3.7: Dominanzbereiche der Photonenreaktionen als Funktion der Kernladungszahl Z und der Energie.



DIE DOMINANZ DER EINZELNEN PHOTONENREAKTIONEN ist wesentlich in der unterschiedlichen Kernladungszahl und Energieabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte begründet. Abbildung 3.7 zeigt die Dominanzbereiche der einzelnen Photonenreaktionen als Funktion der Energie und der Kernladungszahl Z für Elemente mit $Z < 100$. Generell ist der Photoeffekt bei niedrigen, die Compton-Streuung bei mittleren und die Paarbildung bei hohen Energien dominant. Im Bereich von Wasserstoff und Helium bei $Z < 2$, wird die Wechselwirkung allerdings nahezu über den ganzen Energiebereich durch die Compton-Streuung dominiert. Erst bei höheren Kernladungszahlen werden der Photoeffekt und die Paarbildung dominanter. Durch die Z^5 -Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts für den Photoeffekt und durch die Z^2 -Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts für die Paarbildung, wird der Energiebereich für die Dominanz des nur linear mit Z wachsenden Compton-Wirkungsquerschnitts immer mehr eingeschränkt. Bei Germanium ($Z = 32$) beginnt die Dominanz der Compton-Streuung bei 0,15 MeV und endet bei 8,28 MeV. Bereits bei Blei ($Z = 82$) ist die Dominanz der Compton-Streuung auf einen Bereich von 0,556 MeV bis 4,74 MeV eingeschränkt.

3.4 Abschwächung von γ -Strahlung

DIE ABSCHWÄCHUNG VON γ -STRAHLUNG kann durch die im vorherigen Kapitel beschriebenen Wechselwirkungen berechnet werden. Nimmt man an, dass ein schmales Strahlungsbündel mit gleicher Energie E_γ eine Materialschicht mit der Dicke d durchdringt, so kann die geschwächte Photonenflussdichte Ψ gemäß einem exponentiellen Absorptionsgesetzes mit

$$\Psi(E_\gamma, d) = \Psi_0 \cdot e^{-N_A \sigma(E_\gamma) d} \quad (3.27)$$

berechnet werden. Der Exponentialterm hängt von der Anzahldichte der Atome N_A und vom totalen atomaren Wirkungsquerschnitt σ

ab. Der totale Wirkungsquerschnitt versteht sich als die Summe der Wirkungsquerschnitte aus den Gleichungen (3.10), (3.21) und (3.26)

$$\sigma(E_\gamma) = \sigma_{ph}(E_\gamma) + \sigma_{co}(E_\gamma) + \sigma_{pa}(E_\gamma). \quad (3.28)$$

Die Anzahldichte der Atome und der atomare Wirkungsquerschnitt für ein Medium mit einer atomaren Masse m und einer Dichte ρ können zum linearen Schwächungskoeffizienten

$$\mu(E_\gamma) = N_A \sigma(E_\gamma) = \sigma(E_\gamma) \cdot \frac{\rho}{m} \quad (3.29)$$

zusammengefasst werden. Häufig wird anstatt des linearen Schwächungskoeffizienten μ auch der Massenschwächungskoeffizient

$$\frac{\mu}{\rho}(E_\gamma) = \sigma(E_\gamma) \cdot \frac{1}{m} \quad (3.30)$$

verwendet, weil er durch die Normierung auf die Dichte für viele Materialien sehr ähnlich ist. Für ein Gemisch aus n verschiedenen Materialien mit den verschiedenen Massenanteilen ω_i kann der totale Massenschwächungskoeffizient zu

$$\frac{\mu}{\rho}(E_\gamma) = \sum_{i=0}^n \omega_i \frac{\mu_i}{\rho_i}(E_\gamma) \quad (3.31)$$

berechnet werden. Aufgrund dieser Überlegung wird das Schwächungsgesetz nach Gleichung (3.27) zu

$$\Psi(E_\gamma, d) = \Psi_0 \cdot e^{-\frac{\mu}{\rho}(E_\gamma)\rho d} \quad (3.32)$$

umgeschrieben. Die Werte für die Massenschwächungskoeffizienten sind für Materialien mit $Z < 100$ und für einen Energiebereich von 1 keV bis zu 100 GeV in der XCOM Datenbank für Photonenwirkungsquerschnitte tabelliert und online abrufbar.⁴¹ Abbildung 3.8 zeigt die Wirkungsquerschnitte für Photonenreaktionen in natürlichem Germanium der Dichte 5,32 g cm⁻³. Die Wirkungsquerschnitte sind zum

⁴¹ M.J. Berger u.a. NIST XCOM: *Photon Cross Sections Database v1.5*. EN-US. Techn. Ber. US Department of Commerce, NIST, 2010. URL: <http://www.nist.gov/pml/data/xcom/index.cfm>.

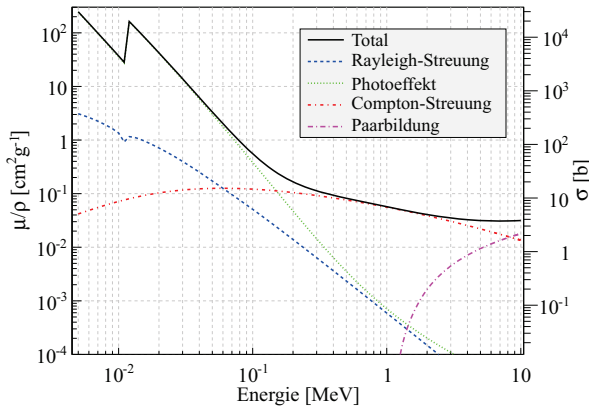


Abbildung 3.8: Wechselwirkungsquerschnitte und Massenschwächungskoeffizienten für die verschiedenen Photonreaktionen als Funktion der Energie in Germanium.

einen in Form von Massenschwächungskoeffizienten nach Gleichung (3.30) und zum anderen als atomare Wirkungsquerschnitte gezeigt. Die Wirkungsquerschnitte werden bei niedrigen Energien durch den Photoeffekt dominiert. Zwischen 1×10^{-2} MeV und $1,5 \times 10^{-2}$ MeV befindet sich die Absorptionskante (K-Schale im Germanium), die zu einer scharfen Erhöhung des Wirkungsquerschnittes um fast eine Größenordnung führt. Die Rayleigh-Streuung spielt über den ganzen Energiebereich hin praktisch keine Rolle in der Berechnung des totalen Wirkungsquerschnittes. Aufgrund der Schwellenenergie für die Paarbildung wird der Einfluss der Paarbildung auf den totalen Wirkungsquerschnitt erst bei deutlich größeren Energie jenseits mehrerer MeV dominant. Im mittleren Energiebereich dominiert die Compton-Streuung.

3.5 γ -spektrometrische Messsysteme

DAS ZIEL DER γ -SPEKTROMETRIE ist die energieaufgelöste Messung von γ -Strahlung. Das Detektionsprinzip beruht dabei auf der Korrelation zwischen der Energie der einfallenden Photonen und der Energie, die durch die oben beschriebenen Wechselwirkungen eines Photon im Detektormaterial freigesetzt wird. Um den Energieübertrag in ein messbares Stromsignal zu wandeln, werden zwei grundsätzlich verschiedene Detektortypen eingesetzt, der Halbleiterdetektor und der Szintillationsdetektor.

ZUM BAU VON HALBLEITERDETEKTOREN wird zumeist hochreines Germanium -eng. High-Purity Germanium (HPGe)- mit einer Reinheit von 99,999 % als Detektormaterial benutzt. Germanium verfügt über eine Bandlücke von 0,75 eV bei 0 K. Das Germanium wird gezielt mit Fremdatomen in einer Konzentration von ungefähr 1×10^{-5} pro Germaniumatom dotiert. Die Dotierung führt zu einer lokalen Veränderung der Bandstruktur und damit der elektrischen Leitfähigkeit des Halbleiters. Man spricht von einer n-Dotierung, falls man mit Fremdatomen mit mehr Valenzelektronen als das Halbleitermaterial, den Donatoren, dotiert. Im Falle von Germanium sind dies beispielsweise die Elemente der fünften Hauptgruppe wie Phosphor, Arsen oder Antimon. Das Valenzelektron des Donators kann sich quasi frei im Leitungsband bewegen. Durch die n-Dotierung entstehen somit eine ortsfeste positive Ladung und ein freibewegliches Elektron. Bei der p-Dotierung wird mit Fremdatomen mit weniger Valenzelektronen als das Halbleitermaterial, den Akzeptoren, dotiert. Im Falle des Germaniums sind dies beispielsweise Elemente der dritten Hauptgruppe wie Bor, Aluminium oder Gallium. Das fehlende Valenzelektron, das zur Bindung des Akzeptors in der Halbleiterstruktur benötigt wird, wird als Loch bezeichnet. Das Loch kann, wie das Elektron in einem n-dotierten Halbleiter, als quasi freibeweglicher Ladungsträger angesehen werden. An der Stelle des Akzeptors entsteht deshalb eine ortsfeste negative Ladung. Bei einer Diode werden

ein p-dotierter Halbleiter und ein n-dotierter Halbleiter in Kontakt gebracht. Aufgrund der unterschiedlichen Konzentrationen von Löchern und Elektronen in den jeweiligen im Vorfeld elektrisch neutralen p- und n-Bereichen, wird ein Diffusionsstrom erzeugt, der die Elektronen und Löcher solange von einander trennt, bis das entstehende elektrische Feld die Diffusionskraft ausgleicht. Es entsteht eine Sperrschicht. Durch das Anlegen einer externen elektrischen Spannung im Bereich von $\pm 2\text{ kV}$ bis $\pm 5\text{ kV}$, je nach Größe des Kristalls, kann diese Sperrschicht nahezu über den ganzen Halbleiter ausgedehnt werden. Man spricht in diesem Fall von einer totalen Verarmung. Für Halbleiterdetektoren macht man sich diesen Effekt zu Nutze. Photonen, die den verarmten Halbleiter durchqueren, erzeugen durch die oben beschriebenen Photonenreaktionen Elektron-Loch-Paare, die aufgrund der angelegten Spannung getrennt und in einen Stromimpuls gewandelt werden. Der generierte Stromimpuls wird verstärkt und anschließend durch einen Vielkanalanalysator nach der Pulshöhe in einzelne Kanäle sortiert. Durch eine entsprechende Energiekalibration des Detektionssystems mit bekannten Prüfstrahlern, können die Kanäle einer Energie zugeordnet werden. In den meisten Fällen sind die Systeme für den Bereich bis zu einigen MeV linear in der Kanal-Energie Zuordnung. In der γ -Spektrometrie im Rahmen von zerstörungsfreien Charakterisierungsverfahren, ist das Detektor-design für einen hohen Energiebereich von einigen keV bis zu mehreren MeV ausgelegt. Für die Detektion von Photonen bei hohen Energien ist es wichtig, dass das Detektorvolumen möglichst groß ist, um die einfallenden Photonen vollständig zu absorbieren. Für Photonen bei niedrigen Energien ist es wichtig, dass der Detektorkristall kaum Totschichten im Eintrittsbereich der Strahlung besitzt. Um diesen großen Energiebereich möglichst gut abzudecken, werden koaxiale HPGe-Kristalle, wie in Abbildung 3.9 gezeigt, eingesetzt. Die Anordnung der Kontakte richtet sich dabei nach der Dotierung des Kristalls. Man unterscheidet zwischen der p-Typ und der n-Typ Konfiguration, bei denen sich entweder der n-Kontakt oder p-Kontakt an der Außenseite des Detektorkristalls befindet. Der n-Kontakt wird durch Diffusion oder Evaporation von Lithium erzeugt und kann wenige mm dick werden. Der p-Kontakt wird durch Ionenimplantation von Bor hergestellt und ist nur wenige μm dick. Betrachtet man nur die Effizienzen, so unterscheiden sich beide Detektortypen bei gleichem Kristallvolumen lediglich in ihrem Ansprechverhalten im niedrigen Energiebereich. Für die Messungen von γ -Strahlung im niedrigen Energiebereich einiger keV, ist die n-Typ Konfiguration eher geeignet, da die Totschicht durch die Kontaktierung im Eintrittsbereich (außen) deutlich geringer ist, als bei der p-Typ Konfiguration. Erst ab ungefähr 150 keV spielt die Anordnung der Kontakte nahezu keine Rolle mehr. Um thermisches Rauschen zu unterdrücken, wird der Detektorkristall durch einen Kühlfinger aus Kupfer im inneren des Kristalls mit flüssigem Stickstoff auf eine Temperatur von rund 80 K gekühlt. Mittlerweile ist die Kühlung des Kristalls auch durch elektrische Kühlgeräte möglich. Thermisches Rauschen kommt zustanden,

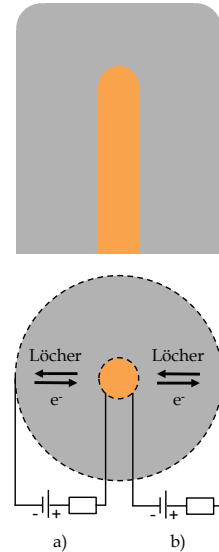


Abbildung 3.9: Aufbau eines koaxialen HPGe-Detektorsystems in einer Seitenansicht (oberer Teil) und in einer Aufsicht (unterer Teil). Mitten im Germaniumkristall (grau) befindet sich der Kühlfinger aus Kupfer (orange). In a) sind die Anschlüsse und die Bewegungsrichtung für Löcher und Elektronen in einem p-Typ Kristall und in b) in einem n-Typ Kristall schematisch skizziert.

indem sich bereits bei Zimmertemperatur aufgrund der thermisch vorhandenen Energie Elektron-Loch-Paare bilden können.

DIE FUNKTIONSWEISE VON SZINTILLATIONSDETEKTOREN basiert auf der Anregung von den Elektronen in einem Szintillator auf eine höheres Energieniveau durch einfallende Photonen. In einem Szintillator fallen die Elektronen anschließend unter Aussendung von Lichtblitzen wieder in den Grundzustand zurück, was man als Lumineszenz bezeichnet. Szintillationsmaterialien sind in der Regel Isolatoren mit einer Bandlücke größer als 5 keV. Die Anregung der Elektronen kann Analog zum Bändermodell in einem Halbleiter verstanden werden. Das einfallende Photon hebt ein Elektron in das Leitungsband, wodurch im Valenzband ein Loch entsteht. Bei der Rekombination des Elektron-Loch-Paares fällt das Elektron aus dem Leitungsband zurück ins Valenzband. Dieser Übergang wird als Szintillation bezeichnet, falls er durch die Emission von Photonen begleitet wird. In den meisten Fällen ist die Lichtausbeute bei solchen Prozessen allerdings sehr gering. Durch die Aktivierung des Detektormaterials mit Fremdatomen, entstehen sogenannte Aktivatorzentren, die zusätzlich Energieniveaus innerhalb der Bandlücke erzeugen. Bei der Rekombination eines Elektron-Loch-Paares in einem aktivierten Szintillator, fällt das Elektron über diese Energieniveaus zurück ins Valenzband und produziert dabei deutlich effizienter sichtbares Licht. Das entstandene Licht wird durch das optisch transparente Detektormaterial und durch Lichtleiter zu einem Photomultiplier geführt, der es schließlich in ein Stromsignal umwandelt und verstärkt. Die Stromimpulse werden anschließend, wie beim Halbleiterdetektor, durch einen Vielkanalanalysator zu einem Spektrum verarbeitet. Zur γ -Spektrometrie wird am häufigsten der anorganische Szintillator NaI, der mit Thallium in einer Konzentration von 0,1 % aktiviert wurde, als Detektormaterial eingesetzt. Seit wenigen Jahren wird neben diesen klassischen Szintillationsdetektoren auch durch Cer aktiviertes LaBr_3 als Detektormaterial eingesetzt.

	HPGe	LaBr_3	NaI
Z_{eff}	32	47	51
ρ [g cm^{-3}]	5,32	5,06	3,67
E_B [eV]	0,75	5,9	6,1
FWHM [%]	0,2	3	7
η [n/keV]	-	65	39
τ [ns]	-	26	230
v_{e^-} [cm/ns]	100	-	-

Tabelle 3.2: Zusammenfassung der Kenndaten von einem HPGe-Detektor (20 % relative Effizienz) und einem $3 \text{ in } \times 3 \text{ in } \text{LaBr}_3$ - sowie NaI-Detektor. τ ist die primäre Zerfallskonstante des Lichtpulses, η ist die Lichtausbeute in Anzahl an Photonen n pro keV deponierter Energie. Das FWHM ist auf eine Energie von 661 keV (^{137}Cs) bei einer Shaping-Time von 6 μs bezogen. E_B ist die Energie der Bandlücke und v_{e^-} ist die Driftgeschwindigkeit der Elektronen im Halbleiter.

DIE WAHL DES DETEKTIONSSYSTEMES hängt stark von der Fragestellung der Messung ab. In Tabelle 3.2 sind die wichtigsten Kenndaten des HPGe-Halbleiterdetektors und der LaBr_3 - und NaI-Szintillationsdetektoren zusammengefasst. Die Effizienz des Detektionssystems, das heißt die Wahrscheinlichkeit ein einfallendes Photon im Detektor komplett zu absorbieren und in einen Stromimpuls umzuwandeln, hängt maßgeblich von der effektiven Kernladungszahl Z_{eff} ab. Die Wirkungsquerschnitte der energiedegradierenden Photonenreaktionen in Materie nach den Gleichungen (3.10), (3.21) und (3.26) sind alle stark Z abhängig. So haben beispielsweise die beiden Szintillationsdetektoren eine deutlich höhere Effizienz als der HPGe-Detektor. Der LaBr_3 -Detektor weist bei gleichem Volumen in der Regel eine 1,3-fach höhere Effizienz als der NaI-Detektor und eine 2- bis 3-fach höhere Effizienz als der HPGe-Detektor auf. Die höhere Effizienz des LaBr_3 -Detektors im Vergleich zum NaI-Detektor ist trotz seiner niedrigeren

effektiven Kernladung durch die deutlich größere Dichte und der damit verbundenen größeren Anzahl an Streuzentren zu erklären. Neben der Effizienz ist die Energieauflösung eine wichtige Eigenschaft. Aufgrund der kleinen Bandlücke des HPGe von nur 0,75 eV, kann ein einfallendes Photon deutlich mehr Elektron-Loch-Paare produzieren als in Szintillationsdetektoren, die eine Bandlücke von mehr als 5 eV aufweisen. Die Energieauflösung skaliert aufgrund statistischer Fluktuationen in der Ladungsträger- beziehungsweise Lichtsammung mit der Anzahl der Elektron-Loch-Paare und ist dadurch bei Halbleiterdetektoren deutlich besser als bei Szintillationsdetektoren. Die Energieauflösung des LaBr_3 -Detektors ist trotz einer ähnlichen Bandlücke als beim NaI-Detektor jedoch deutlich verbessert, da die Lichtausbeute, die Anzahl von Szintillations-Photonen pro keV deponierter Energie, beim LaBr_3 -Detektor fast doppelt so hoch ist wie beim NaI-Detektor. Neben der Effizienz und der Energieauflösung ist auch die Zeitauflösung des Detektionssystems wichtig. Nimmt man an, dass die Elektronen in einem $3\text{ in} \times 3\text{ in}$ HPGe-Detektor im Durchschnitt 2 cm mit einer Driftgeschwindigkeit von 100 cm ns^{-1} zurück legen müssen, so beträgt die Sammlungszeit ungefähr 200 ns. Bei den Szintillationsdetektoren ist die wichtigste Kenngröße für die Zeitauflösung die primäre Zerfallskonstante, die angibt, welche Zeit benötigt wird, damit ein erzeugter Lichtimpuls auf $1/e$ seiner anfänglichen Intensität abgeklungen ist. Aufgrund der kurzen Zeitkonstante des LaBr_3 -Detektors ist hier die Zeitauflösung am besten. Dies ist insbesondere bei der Betrachtung von Totzeiten für die Messung von hochradioaktiven Proben von Bedeutung. Die Totzeit bezeichnet die Zeitspanne, in der der Detektor und seine Nuklearelektronik unmittelbar nach der Detektion eines Photons nicht auf ein weiteres Photon reagieren kann. Die Totzeiten sind beispielsweise durch die Ladungssammlung im Detektorkristall, der Zeitkonstanten des Vorverstärkers

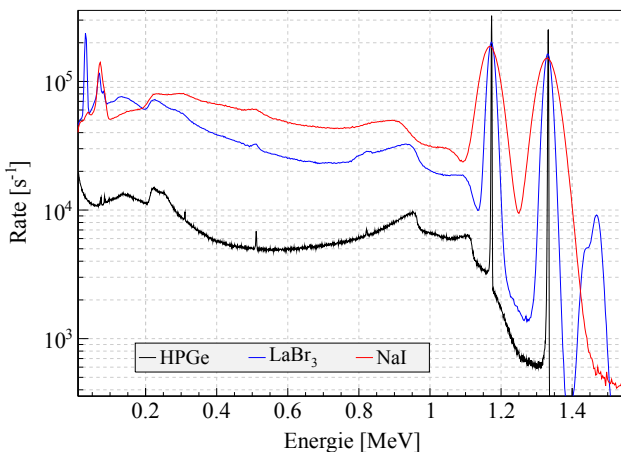


Abbildung 3.10: Vergleich von ^{60}Co -Spektren, die mit einem HPGe-, einem LaBr_3 - und einem NaI-Detektor aufgenommen wurden.

oder die Shaping-Time beziehungsweise die Rise- und Fall-Time im Verstärker bedingt. Eine Reduzierung der Shaping-Time beziehungsweise der Rise- und Fall-Time kann zu einer deutlichen Reduzierung der Totzeiten führen, was aber auch zu einer gleichzeitigen Verschlechterung der Energieauflösung führt. Als Zusammenfassung für den Vergleich der unterschiedlichen Detektionssysteme ist in Abbildung 3.10 das Spektrum einer ^{60}Co mit einer Aktivität von 102,6 kBq am Datum der Messung, aufgenommen mit einem HPGe-, LaBr_3 - und einem NaI-Detektor bei jeweils gleicher Messzeit, gezeigt. Die Entfernung der Quelle zum Eintrittsfenster des Detektors beträgt 14,5 cm. Man erkennt die deutliche Überlegenheit der HPGe-Detektoren in der Energieauflösung. Da der Nachteil der niedrigeren Effizienz des HPGe-Detektors im Vergleich zum LaBr_3 - und NaI-Detektor durch eine längere Messzeit ausgeglichen werden kann, werden zurzeit HPGe-Detektoren als Standard in der zerstörungsfreien Charakterisierung von Abfallfässern eingesetzt.

3.6 Schlüsselnuklide und Skalierungsverfahren

SKALIERUNGSVERFAHREN dienen der Bestimmung der Aktivitäten des gesamten Radionuklidinventars von Abfallfässern durch die Messung von wenigen Schlüsselnukliden. Im Rahmen der zerstörungsfreien radiologischen Charakterisierung wird zwischen einfach messbaren Radionukliden -eng. Easy-To-Measure (ETM)-, schwer messbaren Radionukliden -eng. Difficult-To-Measure (DTM)- und nicht messbaren Radionukliden -eng. Impossible-To-Measure (ITM)- unterschieden. ETM-Radionuklide sind solche Radionuklide, die in ihren Zerfällen γ -Strahlung in einem Energiebereich von mehr als 100 keV in einer ausreichenden Intensität produzieren und daher auch nach der Absorption in der Abfallmatrix nachweisbar sind. Typische ETM-Radionuklide für die zerstörungsfreie Charakterisierung sind daher beispielsweise ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{152}Eu oder ^{154}Eu . Ein klassisches DTM-Radionuklid ist ^{241}Am mit einer charakteristischen γ -Linie bei nur 59,5 keV. Aufgrund der vergleichsweise geringen Energie der γ -Linie wird ^{241}Am fast komplett durch die Abfallmatrix abgeschirmt. Nur sehr starke ^{241}Am -Quellen können außerhalb eines Abfallfasses nachgewiesen werden. ITM-Radionuklide im Sinne der zerstörungsfreien radiologischen Charakterisierung sind reine α - und β -Strahler wie ^{233}U sowie ^{93}Zr , ^{129}I und ^{99}Tc , da ihre charakteristische Strahlung komplett durch die Abfallmatrix abgeschirmt wird. Eine direkte Messung von ITM-Radionukliden kann nur durch zerstörende Messverfahren durchgeführt werden. Um Rückschlüsse aus den Messungen von ETM-Radionukliden auf das gesamte Radionuklidinventar eines Abfallfasses zu ziehen, werden die Aktivitäten von DTM- und ITM-Radionukliden durch Nuklidvektoren im Rahmen von Skalierungsverfahren bestimmt. In Nuklidvektoren werden die Korrelationen von Aktivitätswerten verschiedener ETM-, DTM- und ITM-Radionuklide festgehalten. Misst man die Aktivität eines ETM-Radionuklides im

Nuklidvektor, so lassen sich die Aktivitäten aller korrelierten Radionuklide berechnen. Die ETM-Radionuklide, die die Grundlage für die Skalierung auf das Inventar an DTM- und ITM-Radionukliden bilden, werden als Schlüsselnuklide bezeichnet. An die Schlüsselnuklide müssen daher zentrale Forderungen gestellt werden:⁴²

- Die Gesamtheit der Schlüsselnuklide muss mit allen DTM- und ITM-Radionukliden korreliert sein.
- Die Schlüsselnuklide müssen in hinreichender Menge in der Abfallmatrix vorliegen.
- Die Halbwertszeiten der Schlüsselnuklide müssen im Vergleich zur benötigten Zeit für die Konditionierung und die Messung ausreichend lang sein.
- Die Schlüsselnuklide müssen durch ähnliche Mechanismen wie die DTM- und ITM-Radionuklide entstanden sein. Bei Abfällen aus dem Betrieb, der Stilllegung und dem Rückbau von Kernkraftwerken, muss beispielsweise zwischen Aktivierungs- und Spaltprodukten unterschieden werden.
- Das chemische Verhalten der Schlüsselnuklide während der Konditionierung muss ähnlich zum chemischen Verhalten der DTM- und ITM-Radionuklide sein.
- Die Schlüsselnuklide müssen γ -spektrometrisch oberhalb der Nachweisgrenzen detektiert werden können.

Die Schlüsselnuklide bezüglich der Abfälle aus dem Betrieb, der Stilllegung und dem Rückbau von Kernkraftwerken, sind das Spaltprodukt ¹³⁷Cs und das Aktivierungsprodukt ⁶⁰Co.⁴³ Die radiologischen Kenndaten dieser Nuklide sind in Tabelle 3.3 zusammengefasst.

⁴² International Atomic Energy Agency, *Strategy and Methodology for Radioactive Waste Characterization*, s. Anm. 36.

	$T_{\frac{1}{2}}$ [yr]	E_{γ} [MeV]	p_{γ}
¹³⁷ Cs	30,07	0,661	0,851
⁶⁰ Co	5,27	1,173	0,999
		1,332	0,999

Tabelle 3.3: Charakteristische γ -Energien E_{γ} und die zugehörigen Emissionswahrscheinlichkeiten p_{γ} für Schlüsselnuklide aus dem Betrieb, der Stilllegung und dem Rückbau von Kernkraftwerken.

⁴³ Plank und Eder, s. Anm. 19.

4

Stand von Wissenschaft und Technik bei γ -Scan Messverfahren

INHALT:

4.1	Ziele von γ -Scan Messungen	38
4.2	Integrale γ -Scan Messungsverfahren (IGS)	38
4.3	Segmentierte γ -Scan Messverfahren (SGS)	40
4.4	Kalibrationsbedingungen und Aktivitätsrekonstruktion beim SGS	43
4.5	Korrekturmethode bei Abweichungen von den Kalibrationsbedingungen	47

⁴⁴ T. Bücherl, E. Kaciniel und C. Lierse. *Synopsis of Gamma Scanning Systems, Comparison of Determining Systems and Measuring Procedures for Radioactive Waste Packages*. Techn. Ber. München: European Network of Testing Facilities for the Quality Checking of Radioactive Waste Packages, 1998.

4.1 Ziele von γ -Scan Messungen

UNTER γ -SCAN MESSVERFAHREN werden verschiedenen zerstörungsfreie Messverfahren zur radiologischen Charakterisierung von Abfallfässern mittels γ -Spektrometrie zusammengefasst.⁴⁴ Es werden dabei hauptsächlich vier Ziele verfolgt:

- Die Identifizierung von γ -emittierenden Radionukliden.
- Die Quantifizierung der räumlichen Radionuklidverteilung.
- Die Quantifizierung der räumlichen Abfallmatrixverteilung.
- Die radionuklidspezifische Aktivitätsrekonstruktion.

Die Identifizierung von Radionukliden wird anhand der aufgenommenen γ -Spektren durchgeführt. Die charakteristischen γ -Linien einzelner Radionuklide sind als Peaks im γ -Spektrum zu erkennen. Die Auswertung dieser Peaks bezüglich ihrer Lage auf der Energie-Achse des γ -Spektrums erlaubt die Zuordnung zu den Radionukliden und somit ihre Identifizierung. Um Peaks im γ -Spektrum voneinander trennen zu können, ist die Energieauflösung des Detektors von besonderer Wichtigkeit. Im vorherigen Kapitel wurde gezeigt, dass mit HPGe-Halbleiterdetektoren die beste Energieauflösung erzielt werden kann. Sie werden daher als Standarddetektor für γ -Scan Messverfahren eingesetzt. Das Detektionssystem besteht neben dem Halbleiterdetektor aus einem Kollimator aus Blei, Eisen, Wolfram oder anderen Materialien mit einer hohen Kernladungszahl Z . Durch die Kollimation können Teilvolumina des Abfallfasses unabhängig voneinander vermessen werden, da die Photonen aus dem unbeprobten Restvolumen des Abfallfasses durch den Kollimator absorbiert werden und somit nicht zum Detektor durchdringen. Zusätzlich wird durch den Kollimator der Untergrund aufgrund der natürlichen Radioaktivität der Umgebung unterdrückt. Das Kollimationsfenster, das der Teil des Kollimators ist, der den Detektor nicht abschirmt, kann dabei schlitzförmig oder zylindrisch sein. Man unterscheidet aufgrund der möglichen Kollimation grundsätzlich zwischen zwei γ -Scan Messverfahren,

- den integralen γ -Scan Messverfahren und
- den segmentierten γ -Scan Messverfahren.

4.2 Integrale γ -Scan Messungsverfahren (IGS)

FÜR EINE INTEGRALE γ -SCAN MESSUNG (IGS) wird der Kollimator des Detektionssystems so angepasst, dass der Detektor die γ -Strahlung des gesamten Abfallfasses integral vermessen kann. Der Aufbau eines integralen γ -Scanners ist schematisch in Abbildung 4.1 gezeigt. Bei integralen Messungen wird das Detektionssystem nicht

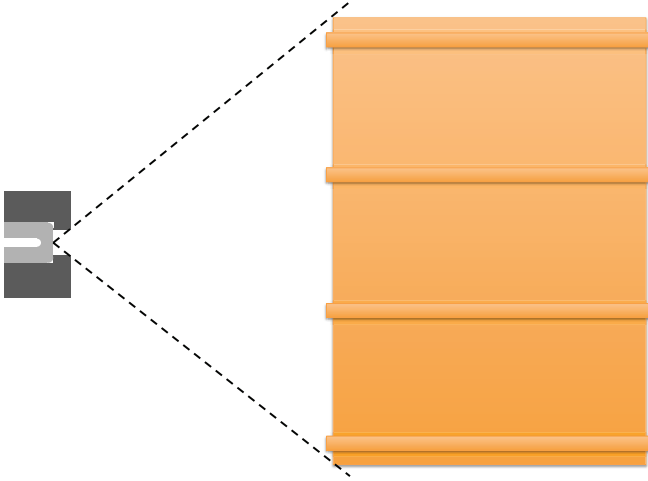


Abbildung 4.1: Schematische Zeichnung eines integralen γ -Scan Messsystems. Das Detektionssystem besteht aus dem HPGe-Detektor (hellgrau) und dem Kollimator (dunkelgrau). Die Öffnung des Kollimators ist so gewählt, dass das Abfallfass (orange) komplett im Sichtbereich des Detektors ist.

bewegt und es wird ein γ -Spektrum repräsentativ für das gesamte Abfallfass aufgenommen. In diesem Spektrum werden die γ -emittierenden Radionuklide identifiziert und eine Zählrate $Z(E_\gamma)$ für jede gefundene γ -Linie bestimmt. Diese Zählrate ist die Grundlage der radionuklidspezifischen Aktivitätsrekonstruktion. Aufgrund des geringen Informationsgehalts müssen im Rahmen der radionuklidspezifischen Aktivitätsrekonstruktion die Forderungen nach

- der Homogenität der räumlichen Radionuklidverteilung und
- der Homogenität der Abfallmatrixverteilung

gestellt werden. Eine Heterogenität der Radionuklid- oder der Matrixverteilung beeinflusst maßgeblich das Absorptionsverhalten der Photonen in der Abfallmatrix und somit auch die gemessene Zählrate. Bei einer homogenen Radionuklid- und Matrixverteilung lässt sich das Absorptionsverhalten aufgrund der hohen Symmetrie analytisch berechnen, sodass die radionuklidspezifischen Aktivitätswerte hinsichtlich der Absorption in der Abfallmatrix korrigiert werden können. Das ist bei heterogenen Verteilung nicht mehr möglich. Durch integrale γ -Scan Messungen können deshalb keine Rückschlüsse auf die räumliche Verteilung der Radionuklide und der Abfallmatrix gezogen werden. Um den Einfluss leicht heterogener Radionuklid- und Matrixverteilungen auf die systematische Fehleinschätzung von radionuklidspezifischen Aktivitäten zu minimieren, wird das Abfallfass kontinuierlich vor dem Detektor rotiert. Unter diesen Randbedingungen erfolgt die Aktivitätsrekonstruktion gemäß der analytischen Methode von Peter Filß aus dem Jahr 1995.⁴⁵ Grundlage für die analytische Methode ist die Effizienzkalibrierung des Detektionssystems. Das Detektionssystem wird mit punktförmigen Prüfstrahlern bei einem Abstand d_0 zum Abfallfass kalibriert. Dieser Abstand entspricht dem Abstand von der Frontfläche des Detektionssystems zum

⁴⁵ P. Filß. "Relation between the activity of a high-density waste drum and its gamma count rate measured with an unshielded Ge-detector". In: *Applied Radiation and Isotopes* 46.8 (Aug. 1995), S. 805–812.

Fasszentrum. Die Effizienz $\epsilon(E_\gamma, d_0)$ wird mittels der im Zeitintervall Δt gemessenen Zählrate $Z_0(E_\gamma)$ unter Berücksichtigung der Aktivität des Prüfstrahlers \mathcal{A}_0 und der Emissionswahrscheinlichkeit der charakteristischen γ -Linie $p(E_\gamma)$ durch

$$\epsilon(E_\gamma, d_0) = \frac{Z_0(E_\gamma)}{\mathcal{A}_0 \cdot p(E_\gamma) \cdot \Delta t} \quad (4.1)$$

bestimmt. Diese Gleichung ist allerdings nur dann gültig, wenn die Halbwertszeit der Radionuklide deutlich größer als die Messzeit ist. Nimmt man ferner an, dass der Detektor durch einen Punkt (Punkt-detektormodel) beschrieben werden kann, so ist die Effizienz unabhängig vom Einfallswinkel der Photonen. Für die Betrachtung der Abstandsabhängigkeit der Effizienz wird die Fernfeldnäherung vorausgesetzt, da der Abstand vom Detektor zu einem beliebigen Punkt im Abfallfass (typischerweise zwischen 30 cm und 80 cm) deutlich größer ist, als die Öffnung des Kollimationsfensters (typischerweise 4 cm). Die Abstandsabhängigkeit ergibt sich dann aus der x^{-2} -Abhängigkeit der Strahlungsintensität einer Punktquelle im Abstand x zum Detektor zu

$$\epsilon(E_\gamma, x) = \epsilon(E_\gamma, d_0) \cdot \left(\frac{d_0}{x}\right)^2. \quad (4.2)$$

Basierend auf der beim integralen γ -Scan gemessenen Zählrate $Z(E_\gamma)$, kann die im Abfallfass verteilte Aktivität \mathcal{A} des Radionuklides mit der charakteristischen γ -Linie bei der Energie E_γ gemäß

$$\mathcal{A} = \frac{Z(E_\gamma) \cdot m}{p(E_\gamma) \cdot \epsilon(E_\gamma, d) \cdot F_0} \cdot \frac{\mu}{\rho} \cdot \frac{K_2}{K_1} \quad (4.3)$$

⁴⁶ siehe Filß, "Relation between the activity of a high-density waste drum and its gamma count rate measured with an unshielded Ge-detector", s. Anm. 45, Abschnitt 4.2.

⁴⁷ siehe ebd., Abschnitt 3 und 4.

berechnet werden.⁴⁶ In dieser Gleichung ist m die Masse des beprobten Fassvolumens, F_0 die Querschnittsfläche des Abfallfasses und K_1 sowie K_2 sind die Korrekturfaktoren für die Absorption der Photonen in der Abfallmatrix beziehungsweise in der Fasswand. Die Bestimmung des Korrekturfaktors K_1 ist sehr komplex und hängt von vielen Faktoren ab.⁴⁷ In einer Grenzbetrachtung gerade für Abfallfässer mit einer Matrixdichte $\rho_M > 1 \text{ g cm}^{-3}$ wird davon ausgegangen, dass quasi alle Photonen in der Abfallmatrix absorbiert werden, und der Korrekturfaktor 1 ist. Der Korrekturfaktor K_2 für die Absorption der Photonen in der Fasswand mit der Dicke d_W ist

$$K_2 = e^{-\mu_{Fe} \cdot 1,25 \cdot d_W}. \quad (4.4)$$

Der Faktor 1,25 berücksichtigt, dass die Photonen aufgrund des Einfallswinkel zumeist größere Strecken als die eigentlich Wanddicke in der Fasswand durchlaufen.

4.3 Segmentierte γ -Scan Messverfahren (SGS)

FÜR EINE SEGMENTIERTE γ -SCAN MESSUNG (SGS) wird der Kollimator des Detektionssystems so angepasst, dass lediglich ein Teilvolumen des Abfallfasses γ -spektrometrisch vermessen wird. Aus

der Auswertung, der für jedes beprobte Teilvolumen gemessenen γ -Spektren, kann eine Zählratenverteilung für jede charakteristische γ -Linie eines identifizierten Radionuklides bestimmt werden. Die Zählratenverteilung kann unter Berücksichtigung der Absorption in der Abfallmatrix als eine räumlich aufgelöste Projektion der Aktivitätsverteilung von identifizierten Radionukliden auf die Mantelfläche des Abfallfasses verstanden werden. Der Informationsgehalt, der aus der Zählratenverteilung über die Radionuklidverteilung gewonnen werden kann, bezieht sich somit maximal auf zwei Raumdimensionen. Eine Rekonstruktion der fehlenden radialen Komponenten der Radionuklidverteilung kann nur durch eine geeignete Auswertemethode, wie in Kapitel 7 beschrieben, erreicht werden. Das räumliche Auflösungsvermögen hängt von der Kollimation sowie der Bewegung des Detektionssystems und von der Bewegung des Abfallfasses ab. In Abbildung 4.2 sind die drei eingesetzten Kollimationsarten aus Sicht des Abfallfasses gezeigt. Mit Schlitzkollimatoren ist man in der Lage eine räumlich aufgelöste Zählratenverteilung in einer Dimension (vertikal oder horizontal) zu erzielen. Durch Kollimatoren mit einem zylindrischen Kollimationsfenster ist es möglich, auch die zweite Raumdimension aufzulösen. Das Detektionssystem kann sowohl vertikal als auch horizontal in einer Ebene vor dem Abfallfass bewegt werden und das Abfallfass kann kontinuierlich oder in äquidistanten Schritten vor dem Detektor rotiert werden. In der Höhe unterteilte Teilvolumina des Abfallfasses werden Segmente genannt und durch die Rotation des Abfallfasses in der Vertikalen unterteilte Teilvolumina werden Sektoren genannt. Es kann dementsprechend in einem Segment auch mehrere Sektoren geben. Durch die Kombination der verschiedenen Bewegungsarten des Abfallfasses und des Detektionssystems sowie der Form des Kollimationsfensters kann die Radionuklidverteilung auf die verschiedensten Arten räumlich aufgelöst werden. Es werden dazu standardmäßig sieben verschiedene Messmodi eingesetzt, die in Tabelle 4.1 zusammengefasst sind:



Abbildung 4.2: Mögliche Formen der Kollimationsfenster für ein Detektionssystem zum Einsatz in segmentierten γ -Scan Messsystemen in einer Frontansicht. In a) und b) sind horizontale beziehungsweise vertikale Schlitzkollimatoren und in c) ist ein Kollimator mit einem zylindrischen Kollimationsfenster skizziert.

V-SGS: Bei vertikal segmentierten γ -Scan Messungen wird ein horizontaler Schlitzkollimator eingesetzt. Das Abfallfass wird nicht rotiert und der Detektor wird in äquidistanten Schritten in vertikaler Richtung bewegt. Das Abfallfass wird somit in n_{seg} Segmenten vermessen und die räumlich Auflösung beschränkt sich auf das Höhenprofil der Radionuklidverteilung. Es wird angenommen, dass die Radionuklid- und Matrixverteilung in jedem Segment homogen ist.

H-SGS: Bei horizontal segmentierten γ -Scan Messungen wird ein vertikaler Schlitzkollimator eingesetzt. Das Abfallfass wird nicht rotiert und der Detektor wird in äquidistanten Schritten in horizontaler Richtung bewegt. Das Abfallfass wird somit in n_{step} Schritten vermessen und die räumlich Auflösung beschränkt sich auf das Längsprofil der Radionuklidverteilung. Es wird angenommen, dass die Radionuklid- und Matrixverteilung in jedem Längsprofil homogen ist.

VH-SGS: Die vertikal und horizontal segmentierten γ -Scan Messungen sind eine Kombination von V-SGS und H-SGS Messungen. Es wird ein Kollimator mit einem zylindrischen Kollimationsfenster eingesetzt. Das Abfallfass wird somit in n_{step} Schritten und n_{seg} Segmenten vermessen.

W-SGS: Bei winkel-segmentierten γ -Scan Messungen wird ein vertikaler Schlitzkollimator eingesetzt. Das Abfallfass wird kontinuierlich vor dem fixierten Detektionssystem rotiert. Es wird jeweils über die n_{sec} äquidistanten Winkelschritte integriert ein γ -Spektrum aufgezeichnet. Die Zählratenverteilung weist eine winkelabhängige Auflösung auf und es muss für jeden Sektor angenommen werden, dass die Radionuklid- und Matrixverteilung homogen ist.

S-SGS Bei Swivel- γ -Scan Messungen wird das Detektionssystem vor dem kontinuierlich rotierenden Abfallfass in äquidistanten Schritten in azimuthaler Richtung gedreht. Der Kollimator verfügt dabei über ein zylindrisches Kollimationsfenster. Für jedes der n_{seg} angefahrenen Segmente können so Informationen über die radiale Ausdehnung der Radionuklidverteilung oder über die radiale Position von Radionuklidanhäufungen gewonnen werden. Dazu muss angenommen werden, dass die Matrixverteilung segmentweise homogen ist.

VR-SGS Der vertikal segmentierte γ -Scan mit einer kontinuierlichen Fassrotation ist eine Erweiterung des V-SGS. Durch die kontinuierliche Rotation werden ähnlich wie bei integralen γ -Scan Messungen die Messfehler aufgrund der räumlichen Heterogenität der Radionuklidverteilung in einem Segment minimiert.

VW-SGS Bei vertikal- und winkel-segmentierten γ -Scan Messungen handelt es sich um eine Kombination von V-SGS und W-SGS Messungen. Das Detektionssystem verfügt über einen Kollimator mit einem zylindrischen Kollimationsfenster. An jedem der n_{seg} angefahrenen Segmente wird während einer kontinuierlichen Fassrotation über n_{sec} äquidistante Winkelschritte integriert ein Spektrum aufgezeichnet. Insgesamt werden die Zählratenverteilung anhand der $n_{seg} \cdot n_{sec}$ γ -Spektren ermittelt.

⁴⁸ E. R. Martin, D. F. Jones und J. L. Parker. *Gamma-ray measurements with the segmented gamma scan*. en. Techn. Ber. Los Alamos Scientific Laboratory, Dez. 1977; Caspary und Sanden, s. Anm. 33; Maurhofer und Odoj, s. Anm. 29.

ALS SGS-STANDARDMODUS ist weltweit der VW-SGS Messmodus etabliert.⁴⁸ Durch die Vielzahl an erfassten γ -Spektren für Teilvolumina des Abfallfasses, die anhand der zylindrischen Geometrie des Abfallfasses optimal verteilt sind, kann die auf die Mantelfläche des Abfallfasses projizierte Radionuklidverteilung bestmöglich räumlich aufgelöst werden. Es wird deswegen nicht weiter zwischen den SGS Messmodi unterschieden. Wird in den folgenden Abschnitten von SGS-Messungen gesprochen, so wird der VW-SGS Messmodus benutzt.














Modus	Abfallfass		Detektionssystem				
	Bew.	n_{sec}	Koll.	Bew.	n_{seg}	n_{step}	n_{spec}
IGS		1		-	1	-	1
V-SGS	-	-		\updownarrow	M	-	M
H-SGS	-	-		\leftrightarrow	1	K	K
VH-SGS	-	-		$\updownarrow\leftrightarrow$	M	K	$M \cdot K$
W-SGS		N		-	1	-	N
S-SGS		1		\updownarrow	M	K	$M \cdot K$
VR-SGS		1		\updownarrow	M	-	M
VW-SGS		N		\updownarrow	M	-	$N \cdot M$

Tabelle 4.1: Zusammenfassung der am häufigsten angewandten segmentierten γ -Scan Messmodi. n_{sec} und n_{seg} sind die Anzahl an beprüften Sektoren beziehungsweise Segmenten. n_{step} ist die Anzahl an horizontalen Bewegungsschritten des Detektionssystems und n_{spec} ist die Anzahl der gemessenen Spektren.

4.4 Kalibrationsbedingungen und Aktivitätsrekonstruktion beim SGS

NACH HEUTIGEM STAND VON WISSENSCHAFT UND TECHNIK basiert die Aktivitätsrekonstruktion beim SGS auf einem analytischen Modell ähnlich zu dem für die Aktivitätsrekonstruktion beim IGS. Die Aktivitätsrekonstruktion basiert auf der Analyse des sogenannten Summenspektrums. Das Summenspektrum ergibt sich aus der Addition der $n_{seg} \cdot n_{sec}$ gemessenen Einzelspektren. Anhand des Summenspektrums werden die charakteristischen γ -Linien ausgewertet und die zugehörigen Radionuklide identifiziert. Jeder γ -Linie kann so eine mittlere Zählrate $Z(E_\gamma)$ zugeordnet werden. Durch diese Mittelung geht die räumliche Auflösung verloren und der Informationsgehalt beschränkt sich auf den selben Gehalt, der bei einer IGS-Messung erzielt wird. Ähnlich wie beim IGS erfolgt die radionuklidspezifische Aktivitätsrekonstruktion unter der Annahme einer homogenen Verteilung des Radionuklidinventars und der Abfallmatrix. Diese Forderungen an die Radionuklid- und Matrixverteilung werden auch Kalibrationsbedingungen genannt.

DAS ANALYTISCHE MODELL zur Rekonstruktion der radionuklidspezifischen Aktivitäten anhand von SGS Messungen wurde ebenfalls von Peter Filß im Jahr 1989 entwickelt.⁴⁹ Das Modell basiert auf der Annahme, dass die Photonen nur dann detektiert werden können, wenn sie innerhalb des Sichtkegels, der durch die Kollimation des Detektors geformt wird, entstehen. Eine schematische Zeichnung des Aufbaus für eine SGS Messung ist in Abbildung 4.3 gezeigt. Das Abfallfass wird in eine aktive Matrix, eine passive Matrix und die Fassung unterteilt. Die aktive Matrix ist der Bereich der Abfallmatrix, der die Radionuklide einschließt. Die passive Matrix ist der Anteil des Abfallfasses der keine Radionuklide enthält. Eine passive Matrix entsteht zum Beispiel bei verpressten Abfällen durch die Wand der Metallkartusche⁵⁰. Zusätzlich kann eine passive Matrix zur Minimierung der Ortsdosisleistung in das Abfallfass eingebracht werden. Die Querschnittsfläche des Sichtkegels normal zur Symmetrieachse des Detektionssystems $F(x)$ bei einem gegebenen Abstand x ist in diesem

⁴⁹ P. Filß. "Specific activity of large-volume sources determined by a collimated external gamma detector". In: *Kern-technik* 54 (1989), S. 198–201.

⁵⁰ siehe Abschnitt 2.1

Fall eine Kalibrationseigenschaft des Detektionssystems. Die Querschnittsfläche $F(x_0)$ an der Oberfläche des Abfallfasses wird durch Messungen eines punktförmigen Prüfstrahlers, der senkrecht zur Detektorachse auf einer Linie schrittweise verschoben wird, bestimmt. Die Halbwertsbreite -eng. Full Width at Half Maximum (FWHM)- der entstehenden glockenförmigen Kurve wird als Durchmesser der kreisförmigen Querschnittsfläche $F(x_0)$ benutzt. Durch die Definition des FWHM dieser Kurve als Maß für die Querschnittsfläche wird zumindest rudimentär berücksichtigt, dass Photonen, die nur durch wenig Kollimatormaterial abgeschirmt werden, trotzdem mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit detektiert werden können. Die Querschnittsfläche $F(x_0)$ ist somit leicht größer als eigentlich durch die Kollimation gegeben. Anhand dieser Kalibration kann die Querschnittsfläche für jeden beliebigen Abstand x durch

$$F(x) = F(x_0) \cdot \frac{x^2}{x_0^2}. \quad (4.5)$$

bestimmt werden. Die Zählrate dT bei der Energie E_γ , die aus der Aktivität in einem kleinen Teilvolumen des Sichtkegels dV generiert wird, kann durch

$$\frac{dT}{dV}(E_\gamma) = C_A \cdot p(E_\gamma) \cdot \epsilon(E_\gamma, x) \cdot a(E_\gamma, x). \quad (4.6)$$

bestimmt werden. In dieser Gleichung ist C_A die Aktivitätskonzentration des Radionuklides mit der charakteristischen γ -Linie bei der Energie E_γ . Die Effizienzkalibrierung wird analog zu der Kalibrierung des IGS-Messsystems mit $x = d_0$ durchgeführt. Nach Gleichung (4.1) kann die Effizienz in der Fernfeldnäherung für jedes beliebige x berechnet werden. Der Term $a(E_\gamma, x)$ beschreibt die Absorptionswahrscheinlichkeit der Photonen in der aktiven (Index M) sowie der passiven (Index P) Matrix und in der Fasswand (Index W). Er wird

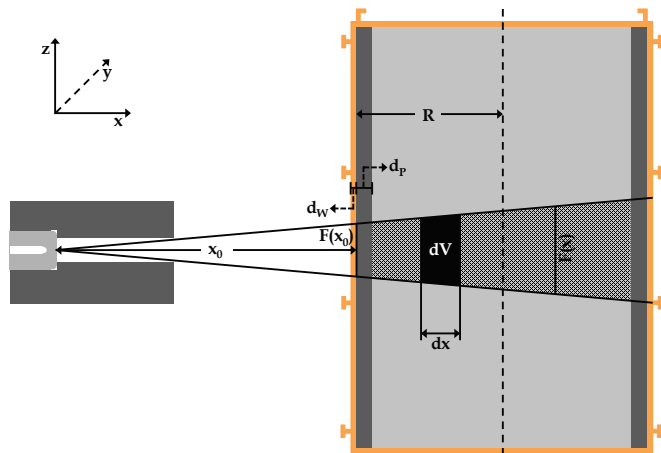


Abbildung 4.3: Schematische Zeichnung eines Messsystems für segmentierte γ -Scan Messungen mit den geometrischen Parametern, die für die Aktivitätsrekonstruktion benötigt werden. Der durch den Kollimator geformte Sichtkegel ist schwarz schraffiert. Die passive Matrix ist dunkelgrau und die aktive Matrix ist hellgrau und die Fasswand ist orange.

im Rahmen der Fernfeldnäherung (schmale Strahlenbündel) durch

$$a(E_\gamma, x) = e^{-\mu_M(E_\gamma) \cdot x} \cdot e^{-\mu_P(E_\gamma) \cdot d_P} \cdot e^{-\mu_W(E_\gamma) \cdot d_W} \quad (4.7)$$

beschrieben. Die Größen d_P und d_W sind die Dicke der passiven Matrix beziehungsweise der Fasswand. Das Volumenelement dV kann durch die Querschnittsfläche $F(x)$ zu

$$dV = F(x) dx. \quad (4.8)$$

umgeschrieben werden. Durch das Einsetzen der Gleichungen (4.2), (4.5), (4.7) und (4.8) in Gleichung (4.6) kann die generierte Zählratenverteilung im Sichtkegel durch

$$T(E_\gamma) = C_A \cdot p(E_\gamma) \cdot \epsilon(E_\gamma, d_0) \cdot F(d_0) \cdot e^{-\mu_P(E_\gamma) \cdot d_P} \cdot e^{-\mu_W(E_\gamma) \cdot d_W} \cdot \int_{x_0+d_P}^{x_0+2R-d_P} e^{-\mu_M(E_\gamma) \cdot x} dx \quad (4.9)$$

berechnet werden. Die Aktivitätskonzentration im Abfallfass ist aufgrund der Forderung nach der Homogenität der Radionuklidverteilung im ganzen Abfallfass konstant und es gilt

$$\mathcal{A} = C_A \cdot V_M. \quad (4.10)$$

Hier ist V_M das Volumen der aktiven Abfallmatrix. Löst man Gleichung (4.9) nach der Aktivität auf und ersetzt die berechnete Zählrate T durch die aus dem Summenspektrum gewonnen mittleren Zählraten \bar{Z} so erhält man

$$\mathcal{A} = \frac{\bar{Z}(E_\gamma)}{p(E_\gamma) \epsilon(E_\gamma, d_0) F(d_0)} \cdot \frac{\mu_M(E_\gamma) V_M}{1 - e^{-\mu_M(E_\gamma) \cdot x(2R-d_P)}} \cdot e^{-\mu_P(E_\gamma) \cdot d_P} \cdot e^{-\mu_W(E_\gamma) \cdot d_W}. \quad (4.11)$$

DIE UNSICHERHEIT der Aktivitätsrekonstruktion ist durch die Unsicherheit der Detektoreffizienz σ_ϵ , durch die Unsicherheit der Querschnittsfläche σ_F und durch die Unsicherheit der gemessenen mittleren Zählrate σ_Z bestimmt. Sie kann durch

$$\sigma_{\mathcal{A}} = \sqrt{\left(\frac{\mathcal{A}}{\epsilon(E_\gamma, d_0)} \sigma_\epsilon \right)^2 + \left(\frac{\mathcal{A}}{F(d_0)} \sigma_F \right)^2 + \left(\frac{\mathcal{A}}{\bar{Z}} \sigma_Z \right)^2} \quad (4.12)$$

berechnet werden. Zusätzliche systematischen Unsicherheiten in der Aktivitätsrekonstruktion sind durch die Annahmen gegeben, die zur Herleitung der analytischen Gleichung (4.11) benutzt wurden:

1. **Ideal sphärischer Detektor:** Die Photonen werden unabhängig von ihrem Ursprungsort innerhalb der Ebene, die durch $F(x)$ aufgespannt wird, detektiert.
2. **Fernfeldnäherung:** Die Photonen aus der Ebene, die durch $F(x)$ aufgespannt wird, werden unabhängig vom Entstehungsort gleichermaßen in der Abfallmatrix absorbiert (paralleles schmales Strahlenbündel).

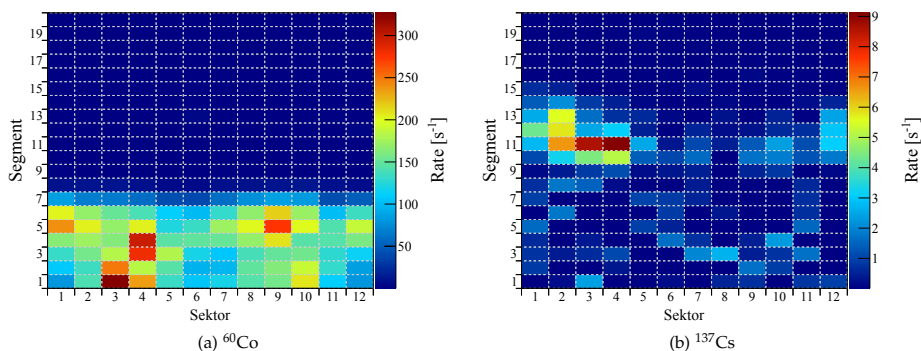


Abbildung 4.4: Zählratenverteilungen für die Schlüsselnuclide ^{60}Co und ^{137}Cs aus einer SGS-Messung eines Abfallfasses mit verpressten Abfallprodukten. Für ^{60}Co ist die Summe der einzelnen Zählratenverteilungen der beiden charakteristischen γ -Linien gezeigt.

⁵¹ siehe Filß, "Specific activity of large-volume sources determined by a collimated external gamma detector", s. Anm. 49, Abschnitt 6.

3. **Idealisierung der Fassgeometrie:** Durch die Integration des Volumens in Abhängigkeit der Querschnittsfläche $F(x)$ wird das Abfallfass als Würfel und nicht als Zylinder angesehen.

Insgesamt sorgen diese Vereinfachungen zu einer systematischen Fehleinschätzung der radionuklidspezifischen Aktivitäten im Bereich von circa 30 %.⁵¹ Weiterhin wurde in den Kalibrationsbedingungen die Homogenität der Radionuklid- und Matrixverteilung gefordert. Die gemessene Zählratenverteilung für jede nachgewiesene γ -Linie würde bei Einhaltung der Kalibrationsbedingungen eine in jedem Segment und Sektor im Rahmen statistischer Schwankungen gleiche Zählrate erwarten lassen. In Abbildung 4.4 sind exemplarisch die Zählratenverteilungen für ^{60}Co und ^{137}Cs in einem Abfallfass mit verpressten Abfallprodukten gezeigt. Durch die statistisch signifikanten lokalen Erhöhungen in beiden Zählratenverteilungen erkennt man, dass die Radionuklidverteilungen für ^{60}Co im unteren Teil (Segmente 1-7) und für ^{137}Cs im mittleren Teil (Segment 10-13) räumlich konzentriert sind. Man spricht dabei von Abweichungen von den Kalibrationsbedingungen. Die Quantifizierung der systematischen Unsicherheiten aufgrund der Abweichungen von den Kalibrationsbedingungen verlangt die Kenntnis der Radionuklid- und Matrixverteilung. In der Praxis verfügt man nicht über diese Kenntnis und die systematische Unsicherheit aufgrund der Abweichung von den Kalibrationsbedingungen kann nicht quantifiziert werden. Eine detaillierte Untersuchung des Einflusses einer heterogenen Radionuklid- und Matrixverteilung in Abhängigkeit von der Matrixdichte und des Abstandes vom Detektor zum Abfallfass hat gezeigt, dass die Abweichung von den Kalibrationsbedingungen zu zum Teil um mehrere Größenordnungen systematisch fehleingeschätzten Aktivitäten führen.⁵² Zusammenfassend müssen für Abfallfässer, bei denen, wie in Abbildung 4.4 zu erkennen, eine heterogene Radionuklid- oder Abfallmatrixverteilung angenommen werden muss, große systematische Unsicherheiten auf die bestimmten radionuklidspezifischen Aktivitäten berücksichtigt werden.

⁵² T.Q. Dung. "Calculation of the systematic error and correction factors in gamma waste assay system". In: *Annals of Nuclear Energy* 24.1 (Jan. 1997), S. 33-47, und darin enthaltenen Referenzen.

4.5 Korrekturmethoden bei Abweichungen von den Kalibrationsbedingungen

BEI ABWEICHUNGEN VON DEN KALIBRATIONSBEDINGUNGEN können verschiedenste Korrekturmethoden angewandt werden, um die Ergebnisse der Genauigkeit und Verlässlichkeit der radionuklidspezifischen Aktivitätsrekonstruktion bezüglich heterogener Radionuklid- und Matrixverteilungen zu verbessern.⁵³ Die wichtigsten dieser Methoden sind im Folgenden aufgelistet:

Differentielle Peak-Absorptions-Technik: Verfügt ein Radionuklid über mehr als eine charakteristische γ -Linie, so werden die Photonen aufgrund ihrer unterschiedlichen Energien mit einer anderen Wahrscheinlichkeit in der Abfallmatrix absorbiert und mit einer anderen Effizienz detektiert. Aus dem Verhältnis der gemessenen Zählraten der charakteristischen γ -Linien eines Radionuklids, lässt sich der Massenschwächungskoeffizient für das Material zwischen dem Detektor und der Strahlungsquelle bestimmen. Diese Art der Korrektur kommt einer pseudo-Homogenisierung der Matrix nahe, da der Abschwächungskoeffizient integral für die Trajektorie von der Strahlungsquelle zum Abfallfass bestimmt wird. Für verschiedene Trajektorien können so auch unterschiedliche Massenschwächungskoeffizienten bestimmt werden. Grundsätzlich benötigt man für diese Methode eine Kenntnis über die Radionuklidverteilung, da die Korrektur wesentlich von der Weglänge der Photonen in der Matrix abhängt. Je nach Radionuklidverteilung kann diese stark variieren.⁵⁴

Kleinwinkel Compton-Streuung: Bei dieser Methode wird die Streustrahlung untersucht, die nach mehrfacher Compton-Streuung in der Abfallmatrix detektiert wird. Die Streuung muss unter kleinen Winkeln stattfinden, da die Photonen sonst nicht zum Detektor gelangen. Unter diesen Bedingungen verlieren die Photonen nur unwesentlich an Energie und werden im Bereich direkt neben dem zugehörigen Peak detektiert. Die Zählrate in einem Bereich von wenigen keV vor dem Peak ist daher charakteristisch für das effektive Z und die Dicke des Materials zwischen der Strahlungsquelle und dem Detektionssystem.⁵⁵ Diese Methode ist nur bei einfachen γ -Spektren mit nur einer Quelle im Abfallfass sinnvoll anwendbar, da andernfalls die Fläche vor den Peaks durch starken Untergrund, beziehungsweise Interferenzen einzelner γ -Linien, beeinflusst wird. Die charakteristischen γ -Energien der Quelle müssen zusätzlich deutlich oberhalb von 661 keV (^{137}Cs) liegen, um einen hinreichend großen Anteil an mehrfach Compton-gestreuter Strahlung zu generieren. Weiterhin ist auch hier die Kenntnis der Radionuklidverteilung nötig, da die Korrektur wesentlich von der Weglänge der Photonen in der Matrix abhängt.⁵⁶

Punktquellen Charakterisierung: Die Idee dieser Methode basiert auf der Analyse der für jeden Sektor genommen Einzelspektren

⁵³ siehe: International Atomic Energy Agency, *Strategy and Methodology for Radioactive Waste Characterization*, s. Anm. 36, Anhang II.

⁵⁴ R. Keyser, T. Towney und R. Hagenauer. *Practical Solutions to Radioactive Waste Characterization*. Techn. Ber. Oak Ridge: EG&G Ortec und Lockheed Martin Energy Systems,

⁵⁵ G. Caspary, K. Kroth und H.-J. Sanden. "Method for determining the activity of large objects using gamma spectrometer". Patent EP1167998 A2 (DE). 2. Jan. 2002.

⁵⁶ R.B. Oberer u. a. *Small-Angle Compton Scattering to Determine the Depth of a Radioactive Source in Matter*. Techn. Ber. Babcock & Wilcox Technical Services Y-12, LLC, 2011.

⁵⁷ T.Q. Dung u. a. "Evaluation of a gamma technique for the assay of radioactive waste drums using two measurements from opposing directions." In: *Applied Radiation and Isotopes* 67.1 (Jan. 2009), S. 164–9, und darin enthaltenen Referenzen.

⁵⁸ A. Dorado, F. V. Frazzoli und R. Emetti. "Segmented Gamma Scanning of Conditioned Radioactive Wastes: Development, Experimental Validation, and Application of an Angular Scanning Procedure for Hot-Spot Characterization". In: *Nuclear Technology* 144 (2003).

⁵⁹ Y. F. Bai u. a. "An improved method for the non-destructive characterization of radioactive waste by gamma scanning." In: *Applied Radiation and Isotopes* 67.10 (Okt. 2009), S. 1897–903.

⁶⁰ M. Bruggeman und R. Carchon. "Solidang, a computer code for the computation of the effective solid angle and correction factors for gamma spectroscopy-based waste assay". In: *Applied Radiation and Isotopes* 52.3 (März 2000), S. 771–776; A. Elhardt. "Aktivitätsbestimmung von Gamma-Emittern in großvolumigen Objekten". Diss. Technische Universität München, 2006.

während einer SGS-Messung. Die denkbar einfachste Technik zur Charakterisierung von Punktquellen basiert auf dem Vorwärts-Rückwärts-Verhältnis.⁵⁷ Pro Segment werden dazu zwei Spektren aufgenommen, jeweils eines von der Vorderseite und eines nach einer Rotation von 180° an der Rückseite. Aus dem Verhältnis von den Zählraten derselben charakteristischen γ -Linie bei der Vorwärts- und bei der Rückwärtsmessung, kann auf die Aktivität der Punktquelle geschlossen werden. In der Literatur wird diese Art der Messung oft auch als eine Messung mit zwei identischen Detektoren beschrieben. Diese Methode erfordert allerdings eine hochgradig symmetrische Radionuklidverteilung, da einzelne Punktquellen aufgrund des niedrigen Informationsgehaltes sonst nicht voneinander unterschieden werden können. Erhöht man die Anzahl der Sektoren pro Segment, so ist es möglich, eine genauere Aussage über die Radionuklidverteilung zu treffen. Die Auswertungen der Zählratenverteilungen in einem Segment basieren auf einem physikalisch motivierten geometrischen Modell. Dieses Modell hat die analytische Berechnung der vom Detektionssystem gemessenen Zählrate, die von einer Punktquelle in einer beliebigen Position im untersuchten Segment generiert wird, zur Aufgabe. In einer ersten Umsetzung dieser Methode wurde vorausgesetzt, dass insgesamt 120 Spektren während der Fassrotation in einem Segment über eine Messzeit von jeweils 60 s aufgenommen werden. Bei der Anpassung des stark vereinfachten analytischen Modells an die Zählratenverteilung konnten die Positionen und die Aktivitäten von bis zu zwei Punktquellen in einem Segment bestimmt werden.⁵⁸ Für die Bestimmung der Zählratenverteilung in dieser hohen Auflösung ist allerdings eine Messzeit von 2 h pro Segment eines Abfallfasses notwendig, sodass eine Routinecharakterisierung mit einem hohen Durchsatz an Abfallfässern durch diese Methode nicht umsetzbar ist. In einer Weiterentwicklung dieses Ansatzes wurde gezeigt, dass auch unter Routinebedingungen, wie in Abschnitt 6.1 beschrieben, Punktquellen gut rekonstruierbar sind.⁵⁹ Beide Ansätze beschränken sich allerdings zurzeit auf die Analyse eines einzelnen Segments, sodass beispielsweise Korrelationen zwischen Zählratenverteilungen einzelner Segmente nicht berücksichtigt werden.

Effizienzfeldberechnung: Der Ansatz dieser Methoden besteht in der Berechnung der Effizienz des Detektionssystems zu einer Quelle, die in einer komplexen Geometrie im Abfallfass eingebettet ist.⁶⁰ Grundlage für die Anwendung von Effizienzfeldberechnungen ist daher die möglichst genaue Kenntnis der Matrixverteilung und deren Modellierung durch einfache geometrische Körper in einer Analysesoftware. Die Übereinstimmung einer möglichen Konfiguration mit der gemessenen Zählratenverteilung wird anhand von Gütefaktoren miteinander verglichen. Das Problem dieser Methoden sind die sehr hohen Rechenzeiten aufgrund der immensen Anzahl an möglichen Konfigurationen für die Anordnungen der ab-

sorbierenden Körper in der Matrix und der Verteilung der Radionuklide. Nach intensiven Parameter- und Leistungsfähigkeitsstudien wurde gezeigt, dass solche Methoden aus den genannten Gründen praktisch nicht in der Routinecharakterisierung von Abfallfässern eingesetzt werden können.⁶¹

⁶¹ siehe: Sanden u. a., s. Anm. 33, Abschnitt 4.2.

5

γ -spektrometrische Simulationen mit Geant4

INHALT:

5.1	Notwendigkeit γ -spektrometrischer Simulationen	52
5.2	Monte Carlo Methoden	52
5.3	Das Geant4-Framework	53
5.4	Livermore-Modelle für Photonen und Elektronen	54
5.5	Applikation für γ -spektrometrische Simulationen	56

5.1 Notwendigkeit γ -spektrometrischer Simulationen

SIMULATIONEN VON SGS-MESSUNGEN sind notwendig, da durch sie der Einfluss einer Vielzahl von Kombinationen aus verschiedenen Radionuklidverteilungen und Abfallmatrizes auf die radionuklid-spezifische Aktivitätsrekonstruktion untersucht werden können. Eine messtechnische Untersuchung der selben Effekte würde eine Herstellung eines Testfasses für jede der gewünschten Konfigurationen erfordern und ist somit alleine aus Zeit- und Kostengründen nicht realisierbar.

5.2 Monte Carlo Methoden

MONTE CARLO METHODE ist ein Überbegriff für einen computer-gestützten stochastisch basierten Algorithmus zur approximativen numerischen Lösung von Problemstellungen. Die Problemstellungen reichen dabei von mathematischen Problemen, wie der Integration und der Lösung von Differentialgleichungen, bis hin zu der Nachbildung von komplexen physikalischen Prozessen, die nicht mehr analytisch betrachtet werden können. Die Grundlage von Monte Carlo Methoden liegt in der Bestimmung von Zufallszahlen, die als Entscheidungsgrundlage für das Eintreten eines Ereignisses genutzt werden. Eine detaillierte Einführung in die Monte Carlo Methodik findet sich in der einschlägigen Fachliteratur.⁶² Der Schlüssel für die Monte Carlo Simulation des Teilchentransports durch Materie, ist die Korrelation der Zufallszahlen mit der Eintrittswahrscheinlichkeit für eine bestimmte Wechselwirkung, die durch den zugehörigen Wirkungsquerschnitt gegeben ist. Eine Trajektorie eines Teilchens in Materie wird dazu in einzelne Schritte unterteilt, für die jeweils die Eigenschaften des Teilchens, wie beispielsweise der Impuls, die Energie sowie die Bewegungsrichtung definiert ist. Zwischen zwei Schritten können die Teilcheneigenschaften gemäß den physikalischen Wechselwirkungsoptionen verändert werden und es können gegebenenfalls neue Sekundärteilchen produziert werden. Das Primärteilchen sowie alle neu entstandenen Sekundärteilchen werden so lange verfolgt (Tracking), bis sie entweder ihre gesamte Energie verloren haben beziehungsweise mit ihrer Energie unter einen bestimmten Grenzwert fallen oder nicht mehr innerhalb des betrachteten Volumens sind. Während des Trackings können relevante Messgrößen, wie die in einem Volumen deponierte Energie oder der Fluss durch eine Oberfläche, ermittelt und gespeichert werden. Diese Messgrößen werden durch Monte Carlo Methoden geschätzt. Ihre Unsicherheit hängt von der Anzahl der simulierten Primärteilchen ab. Durch eine größere Anzahl an Primärteilchen N kann die Unsicherheit, die normalerweise mit $1/\sqrt{N}$ skaliert, minimiert werden.

⁶² zum Beispiel: R. Y. Rubinstein. *Simulation and the Monte Carlo Method*. Hrsg. von David J Balding u. a. Bd. 707. Wiley Series in Probability and Statistics November. John Wiley & Sons, 2008, S. 374.

5.3 Das Geant4-Framework

GEANT4 IST EIN MONTE CARLO FRAMEWORK für die Simulation des Teilchentransports durch Materie sowie der Detektion von Strahlung.⁶³ Der Name Geant ist ein Akronym für **Geometry and Tracking**. Das Geant4-Framework ist in C++ geschrieben und hat den Vorteil der objektorientierten Programmierung zur Transparenz des Codes. Geant4 berücksichtigt für die Simulation die folgenden Aspekte:

- Die Geometrie des Detektionssystems und passiver Komponenten.
- Die Materialzusammensetzung der geometrischen Objekte.
- Die Eigenschaften bekannter Teilchen.
- Die Produktion von Primärteilchen.
- Das Tracking von Teilchen durch Materie und elektromagnetische Felder.
- Die physikalischen Wechselwirkungsprozesse.
- Die Detektion von Teilchen beziehungsweise Strahlung in sensitiven Volumina.
- Die Speicherung von Ereignissen und Trajektorien.
- Die Visualisierung.
- Die Analyse von simulierten Daten an jedem Punkt der Simulation.

Für eine Simulation mit Geant4 muss der Benutzer mindestens drei Klassen bereitstellen, für die kein Standardverhalten definiert ist:

G4UserDetectorConstruction: In dieser Klasse wird die Geometrie des sensitiven Detektors und anderer passiver Komponenten sowie die Materialzusammensetzung der einzelnen Komponenten definiert. Als erster Schritt wird ein Weltvolumen definiert, in dem alle anderen Komponenten platziert werden. Der sensitive Detektor sowie die passiven Komponenten werden durch vorgegebene geometrische Körper, wie zum Beispiel Körper vom Typ G4Tubs (Zylinder und Röhren) oder G4Box (Quader), erzeugt. Aus einem geometrischen Körper zusammen mit seiner Materialzusammensetzung durch ein Objekt vom Typ G4Material wird ein G4LogicalVolume erzeugt. Aus dem logischen Volumen zusammen mit der Angabe von Positionskordinaten relativ zum Weltvolumen oder einem anderen sogenannten Muttervolumen wird schließlich ein Objekt vom Typ G4PhysicalVolume erzeugt. Alle physikalischen Volumina müssen innerhalb des Weltvolumens platziert sein. Bei der Initialisierung einer Geant4 Applikation wird die Funktion G4UserDetectorConstruction::Construct() aufgerufen die dem Framework das physische Weltvolumen mit allen anderen definierten physikalischen Volumina übergibt.

⁶³ S. Agostinelli u. a. "Geant4 - A simulation toolkit". In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 506.3 (Juli 2003), S. 250–303; J. Allison, K. Amako und J. Apostolakis. "Geant4 developments and applications". In: *Nuclear Science* 53.1 (2006), S. 270–278.

G4UserPhysicsList: In dieser Klasse werden alle Teilchen definiert, die während der Simulation benötigt werden. Für alle bekannten Teilchen gibt es dazu Standarddefinitionen, die in der Funktion `G4UserPhysicsList::ConstructPaticles()` initialisiert werden müssen. In der Funktion `G4UserPhysicsList::ConstructProcesses()` müssen alle Wechselwirkungsprozesse definiert werden, die für den Transport der jeweiligen Teilchen benötigt werden. Für die Wechselwirkungsprozesse werden vordefinierte Klassen angeboten, wie sie beispielsweise in Abschnitt 5.4 vorgestellt werden. Die beiden Funktionen `ConstructPaticles()` und `ConstructProcesses()` werden ebenfalls bei der Initialisierung der Geant4 Applikation aufgerufen und bilden die physikalische Grundlage der Simulation.

G4UserPrimaryGeneratorAction In dieser Klasse werden alle Eigenschaften der Primärteilchen definiert. In der Funktion `G4UserPrimaryGeneratorAction::GeneratePrimaries(G4Event*)` wird ein Objekt vom Typ `G4ParticleGun` erzeugt, das über Änderungsmethoden für alle wichtigen Eigenschaften der Teilchen, wie die Art des Teilchens, seinen Entstehungsort (primärer Vertex), die Energie, den Impuls, die Richtung des Impulses und die Polarisation verfügt. All diese Informationen werden einem Objekt vom Typ `G4Event` übergeben, was schließlich durch Geant4 verarbeitet wird.

Mit diesen Klassen kann eine Geant4 Simulation gestartet werden, die allerdings keine Ergebnisse aufzeichnet. Dazu muss der Nutzer die sogenannten Action-Klassen

- `G4UserRunAction`,
- `G4UserEventAction`,
- `G4UserStackingAction`,
- `G4UserTrackingAction` und
- `G4UserSteppingAction`

benutzt. Ein `G4Run` ist dabei die größte Einheit und besteht aus einer Sequenz von Primärteilchen, die durch die Funktion `G4Run::BeamOn()` gestartet wird. Das `G4Event` beinhaltet alle Informationen über die Trajektorie eines einzelnen Primärteilchens mit seinen Sekundärteilchen, die sich aus `G4Steps` zusammensetzt, und über die Interaktionen der Teilchen in einem sensitiven Detektorvolumen. Durch diese Action-Klassen kann zu jeder Zeit in der Simulation mit dem jeweiligen Primärteilchen und den entstehenden Sekundärteilchen kommuniziert werden.

5.4 Livermore-Modelle für Photonen und Elektronen

DIE WECHSELWIRKUNGSPROZESSE für Photonen und Elektronen bei niedrigen Energien basieren in Geant4 auf den Livermore-Modellen

für elektromagnetische Wechselwirkungen. In diesen Prozessen werden die folgenden Teilchen berücksichtigt:

Bosonen: γ .

Leptonen: e^- , e^+ , μ^- und μ^+ .

Mesonen: π^- , π^+ , K^- und K^+ .

Barionen: p und \bar{p} .

Ionen: ^2H , ^3H , ^3He und ^4He .

Durch die G4EmLivermorePhysics-Klasse werden die Rayleigh-Streuung, der Photoeffekt, die Compton-Streuung und die Paarbildung für die Wechselwirkung von Photonen mit Materie berücksichtigt. Die Thomson- und Raman-Streuung werden aufgrund ihrer vernachlässigbaren Einflüsse auf den totalen Wirkungsquerschnitt für Photonen mit Materie nicht berücksichtigt. Weiterhin werden die Ionisation, beziehungsweise die Produktion von Bremsstrahlung, für die Wechselwirkungen von Elektronen mit Materie berücksichtigt. Die Wechselwirkungsquerschnitte und die zugehörigen Verteilungsfunktionen der physikalischen Parameter für die Livermore-Modelle basieren auf der EPDL97 Datenbank⁶⁴ und sind im Physics Reference Manual von Geant4⁶⁵ dokumentiert. Eine Zusammenfassung der wichtigen Wechselwirkungsprozesse und der zugehörigen Prozessklassen mit dem gültigen Energiebereich findet sich in Tabelle 5.1. Ab einer Energie von 1 GeV werden in Geant4 allerdings standardmäßig nicht mehr die Livermore-Modelle, sondern die elektromagnetischen Standard-Modelle genutzt. Dieser Energiebereich ist jedoch für γ -spektrometrische Simulationen irrelevant.

DIE WIRKUNGSQUERSCHNITTE und die zugehörigen Verteilungsfunktionen, die von Geant4 berechnet werden, wurden mit den Modellen des SANDIA National Laboratories zur Berechnung der Photon-Wirkungsquerschnitte für Photonenergien oberhalb von 10 keV und für Elemente mit $Z < 100$ ⁶⁶ sowie mit der NIST Datenbank⁶⁷ verglichen. Es konnte gezeigt werden, dass die SANDIA-Modelle und die NIST-Datenbank im Rahmen statistischer Fluktuationen gut mit den berechneten Werten aus Geant4 übereinstimmen. Lediglich bei der Rayleigh-Streuung zeigten sich im niederenergetischen Bereich Unterschiede zwischen der Berechnung von Geant4 und der NIST-Datenbank, die durch die großen Unterschiede zwischen der EPDL97-

⁶⁴ D.E. Cullen, J.H. Hubbell und L. Kissel. *EPDL97: the evaluated photo data library '97 version*. English. Techn. Ber. Livermore: Lawrence Livermore National Laboratory, Sep. 1997.

⁶⁵ Geant Collaboration. *Physics Reference Manual*. Techn. Ber. Genf, 2012.

⁶⁶ F. Biggs und R. Lighthill. *Analytical Approximations for X-Ray Cross Sections III*. en. Techn. Ber. Albuquerque: Sandia National Laboratories, Aug. 1988.

⁶⁷ Berger u. a., s. Anm. 41.

Tabelle 5.1: Zusammenfassung der Prozessklassen und -modelle für die Simulation der Wechselwirkung von Photonen und Elektronen mit Materie.

Prozess	Prozessklasse	Prozessmodell	Energiebereich
Rayleigh-Streuung	G4RayleighScattering	G4LivermoreRayleighModel	250 eV-100 GeV
Photoeffekt	G4PhotoElectricEffect	G4LivermorePhotoElectricModel	250 eV-100 GeV
Compton-Streuung	G4ComptonScattering	G4LivermoreComptonModel	250 eV-100 GeV
Paarbildung	G4GammaConversion	G4LivermoreGammaConversionModel	1022 keV-100 GeV
Ionisation	G4eIonisation	G4LivermoreIonisationModel	10 keV-100 GeV
Bremsstrahlung	G4eBremsstrahlung	G4LivermoreBremsstrahlungModel	10 keV-100 GeV

⁶⁸ G.a.P. Cirrone u. a. "Validation of the Geant4 electromagnetic photon cross-sections for elements and compounds". In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A* 618.1-3 (Juni 2010), S. 315-322.

Datenbank und der NIST-Datenbank zu erklären sind. Die Rayleigh-Streuung spielt in den benötigten γ -spektrometrischen Simulationen allerdings nur eine untergeordnete Rolle. Zusätzlich wurde ein Konsistenztest zwischen den in Geant4 berechneten Werten und der EPDL97-Datenbank durchgeführt. Es wurde dabei gezeigt, dass die Werte innerhalb von 0,2 % miteinander übereinstimmen und somit konsistent sind.⁶⁸ Grundsätzlich wurde durch diese Tests gezeigt, dass die Livermore-Modelle, wie sie in Geant4 implementiert wurden, valide sind und präzise γ -spektrometrische Simulationen mit Geant4 möglich sind.

5.5 Applikation für γ -spektrometrische Simulationen

DIE GEANT4 APPLIKATION für die Simulation von γ -spektrometrischen Messungen, wie sie für diese Arbeit genutzt wird, besteht aus den drei obligatorischen Klassen

- DetectorConstruction,
- PhysicsList sowie
- PrimaryGeneratorAction,

und aus den drei Action-Klassen

- RunAction,
- EventAction sowie
- SteppingAction.

Die Ergebnisse aus den Action-Klassen werden in einer Analysis-Klasse gespeichert. Die Analysis-Klasse speichert am Ende eines Runs die Anzahl an generierten Primärteilchen und die Anzahl an Primärteilchen, die den Detektor treffen, ab. In den drei obligatorischen Klassen werden die Detektorgeometrie, die Wechselwirkungsprozesse basierend auf der G4EmLivermorePhysics-Klasse und die Quelle der Primärteilchen definiert. Die Impulsrichtung der Primärteilchen wird zur Rechenzeitminimierung in einen Konus mit einem Öffnungswinkel von 10° in Richtung des sensitiven Detektors gezwungen, um die unnötige Simulation von Teilchen, die ohnehin nur durch eine stark energiedegradierende Mehrfachstreuung, den Detektor erreichen können, zu vermeiden. Zur Korrektur dieser Optimierung werden die vom sensitiven Detektor registrierten Zählraten am Ende eines Runs hinsichtlich des Verhältnisses der Raumwinkel $\Omega_{sim}/4\pi$ korrigiert. Die Zählvariablen in der Analysis-Klasse werden am Anfang eines Runs durch die RunAction-Klasse initialisiert. Neben den Teilchenanzahlen wird am Ende eines Events die im Detektor deponierte Energie des Primärteilchens und der Sekundärteilchen aus einem Event in ein Spektrum eingetragen. Der Energieübertrag wird dabei über jeden Schritt der Primär- und Sekundärteilchen durch die SteppingAction-Klasse an die Analysis-Klasse übergeben und dort für das gesamte

Event aufaddiert. Die `EventAction`-Klasse steuert dabei sowohl die Initialisierung der Zählvariable für den Energieübertrag als auch den Eintrag in das Spektrum am Ende des Events. Am Ende eines Runs wird das Spektrum abgespeichert. Für die Verarbeitung und Speicherung der Spektren wird das ROOT Framework benutzt.⁶⁹ Jedes Spektrum wird in einem Objekt vom Typ `TTree` weggeschrieben, welches nach der Simulation durch entsprechende Makros verarbeitet werden kann.

⁶⁹ R. Brun und F. Rademakers. "ROOT - An object oriented data analysis framework". In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A* 389.1-2 (Apr. 1997), S. 81–86.

6

Segmentiertes γ -Scan Messungen am Forschungszentrum Jülich

INHALT:

6.1	Das SGS-Messsystem Gernod II	60
6.2	Routineeinstellungen für SGS-Messungen von konditionierten Abfällen	62
6.3	Effizienzkalibration des Detektionssystems	62
6.4	Detektorimplementierung und Simulation von SGS-Messungen in Geant4	64
6.5	Quantifizierung der Einhaltung von Kalibrationsbedingungen	66

6.1 Das SGS-Messsystem Gernod II

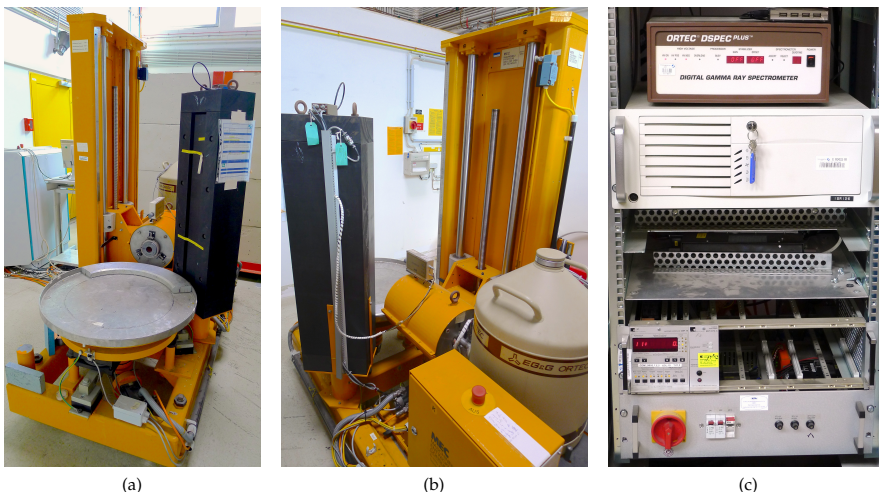


Abbildung 6.1: Das γ -Scan Messsystem Gernod II für die Routinecharakterisierung von radioaktiven Abfallfässern am Forschungszentrum Jülich. In a) ist eine Frontansicht und in b) eine Rückansicht von Gernod II zu sehen. In c) ist die Nuklear- und Steuerelektronik von oben nach unten mit dem DSPEC von ORTEC, dem Computer, der Wägeelektronik und der Stromversorgung zu sehen.

DIE CHARAKTERISIERUNG von radioaktiven Abfallfässern wird am Forschungszentrum Jülich mit dem γ -Scan System Gernod II durchgeführt. Gernod II wurde am Forschungszentrum Jülich mit Hilfe von Kooperationspartner aus der Industrie entwickelt. Abbildung 6.1 zeigt das γ -Scan System bestehend aus einem Drehteller mit eingebauter Wägeeinheit und einer Hubeinrichtung. Der Drehteller ist für eine Maximalbelastung von 6000 kg zugelassen. Mit einem Durchmesser von 100 cm ist der Drehteller für standardisierte Abfallfässer mit einem Volumen von 100 l, 200 l, 280 l und 400 l konzipiert. Der Drehteller wird durch einen Schrittmotor angetrieben. Die Motorsteuerung erlaubt sowohl das Anfahren vordefinierter Winkelpositionen als auch den kontinuierlichen Betrieb mit Drehzahlen zwischen 0,1 rpm und 4 rpm. Das Detektionssystem kann mit der spindelgetriebenen Hubeinrichtung vertikal bewegt werden. Der Schrittmotor der Hubeinrichtung erlaubt neben einem kontinuierlichen Antrieb auch das Anfahren vordefinierter Höhenpositionen. Die von einem Abfallfass emittierte γ -Strahlung wird von einem hochauflösenden n-Typ HPGe-Detektor nachgewiesen. Der Detektor aus der Serie GMX 20190P+S der Firma Ortec⁷⁰ besitzt eine relative Effizienz von 20 %. Abbildung 6.2 zeigt eine technische Zeichnung des Detektorkristalls mit dem Gehäuse. Der Detektorkristall hat einen Durchmesser von 49,6 mm und eine Höhe von 53,1 mm. Zur Unterdrückung des thermischen Rauschens, wird der Germaniumkristall durch einen Kühlfinger aus Kupfer, der an ein Kryostat mit einem 30 l-Reservoir aus flüssigem Stickstoff angeschlossen ist, gekühlt. Der Durchmesser des Kühlloches im Germaniumkristall beträgt 9,8 mm und die Tiefe beträgt 44,5 mm. Nach außen hin wurde ein 0,3 μ m dicker Bor-Kontakt implantiert (p-

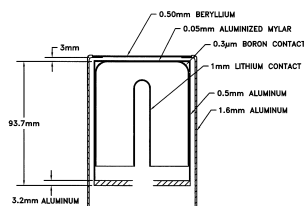


Abbildung 6.2: Technische Zeichnung des Detektoraufbaus.

⁷⁰ www.ortec-online.de

Kontakt). Auf der Außenseite des Kühlloches wurden Lithium-Ionen (n -Kontakt) in den Germaniumkristall diffundiert. Das Eintrittsfenster besteht aus einer 0,5 mm dicken Beryllium-Schicht kombiniert mit einer 0,05 mm dicken aluminisierten Mylar-Folie. Die Wahl der n -Typ Konfiguration für den Detektor basiert auf der größeren Effizienz dieser Detektorkonfiguration für γ -Strahlung im niederenergetischen Bereich⁷¹. Dadurch ist γ -Strahlung von dem zu den Transuranen gehörende Radionuklid ^{241}Am mit seiner charakteristischen γ -Linie bei 59,5 keV besser nachweisbar als mit der p -Typ Konfiguration. Während des Betriebs wird eine Spannung von 2500 V an den Detektor angelegt. Der Detektor wird durch einen Bleizylinder mit einem Durchmesser von 11 cm kollimiert. Der Bleizylinder hat ein zylindrisches Kollimationsfenster mit einem Durchmesser von 4 cm. Die Länge des Kollimationsfenster bis zum Eintrittsfenster des Detektors beträgt 20,6 cm. Der Abstand vom Eintrittsfenster des Detektors zum Zentrum des Drehtellers beträgt 63 cm. Die Signalverarbeitung erfolgt durch einen High-Performance Digital Signal Processor für γ -Spektrometrie (DSPEC) der Firma ORTEC. Der Vorverstärker ist dazu direkt am Detektor angebracht. Der DSPEC beinhaltet einen digitalen Verstärker mit einstellbaren Rise- und Fall-Times zwischen 0,8 μs und 23 μs . Die Rise- und Fall-Time ist für SGS-Messungen auf 8 μs eingestellt. Das entspricht einer Shaping-Time von 4 μs bei einer analogen Signalverarbeitung. Der Vielkanalanalysator sortiert die gemessenen Pulse in insgesamt 4096 Kanäle. Der DSPEC verfügt über eine automatisierte Totzeit-Korrektur der γ -Spektren nach der Gedcke-Hale Methode.⁷² Die Totzeit-Korrekturen dienen der Korrektur der gemessenen γ -Spektren hinsichtlich der Zählereignisse, die aufgrund von Totzeiten des Detektors und seiner Elektronik nicht registriert werden konnten. Durch die Totzeit-Korrekturen kann sichergestellt werden, dass alle in einer SGS-Messung aufgenommenen γ -Spektren auf das selbe Messzeitintervall bezogen werden können. Die Totzeit-Korrektur ist daher von grundlegender Bedeutung für die Addition der Einzelspektren zu einem Summenspektrum, da bei der Addition von einzelnen γ -Spektren nur dann die Varianz des Summenspektrums korrekt bestimmt werden kann, wenn die einzelnen γ -Spektren über demselben Messzeitintervall gemessen wurden.

⁷¹ siehe Abschnitt 3.5

⁷² D. L. Upp u. a. *An Innovative Method for Dead Time Correction in Nuclear Spectroscopy*. Techn. Ber. Oak Ridge: PerkinElmer Instruments Inc.

DIE DATENNAHME UND STEUERUNG des γ -Scan Systems Gernod II sowie die spätere Aktivitätsrekonstruktion, erfolgen mit der im Forschungszentrum Jülich entwickelten Operations- und Auswertesoftware SCANNER₃₂. SCANNER₃₂ liest während der Spektrennahme direkt den Vielkanalanalysator des DSPEC aus und benutzt zur Auswertung der γ -Spektren das Softwarepaket Gamma-Vision der Firma Ortec.⁷³ Die Identifizierung von γ -Linien und die Berechnung der Zählraten werden anhand des Summenspektrums durchgeführt. Durch die Identifizierung der γ -Linien im Summenspektrum werden sogenannte Region of interest (ROI) festgelegt, die anschließend auch in den Einzelspektren ausgewertet werden. In SCANNER₃₂ sind eine Nukliddatenbank, basierend auf den WWW Tables of Radioactive

⁷³ Ortec. *MAESTRO MCA Emulation Software*. 2013. URL: <http://www.ortec-online.com/Solutions/applications-software.aspx>.

⁷⁴ L.P. Ekström und R.B. Firestone. WWW Table of Radioactive Isotopes, database. 1999.

⁷⁵ Berger u. a., S. Anm. 41.

	Standard	Alternativ
n_{seg}	20	20
Δh [cm]	4	4
ω [$^{\circ}$ s $^{-1}$]	2	1
$\Delta\theta$ [$^{\circ}$]	30	15
n_{sec}	12	24
$n_{\text{sec}}^{\text{tot}}$	240	480
t [s]	15	15
t_{tot} [h]	1	2

Tabelle 6.1: Scanmodi für SGS-Messungen. n_{seg} und Δh sind die Anzahl an beprobten Segmenten und ihre Höhe. n_{sec} und $n_{\text{sec}}^{\text{tot}}$ sind die Anzahl an beprobten Sektoren je Segment beziehungsweise die insgesamt beprobten Sektoren. $\Delta\theta$ ist die Rotationschrittweite und t beziehungsweise t_{tot} sind die Messzeiten pro Sektor sowie für das gesamte Fass.

	A [kBq]	σ_A [%]
^{241}Am	362,3	3
^{152}Eu	370,7	3
^{137}Cs	382,8	3
^{60}Co	370,0	3

Tabelle 6.2: Zusammenfassung der physikalischen Kenndaten von punktförmigen Prüfstrahlern für die Effizienzkalibration. Die Aktivitäten A beziehen sich auf das Datum der Messung. σ_A ist die vom Hersteller angegebene Unsicherheit der Aktivität.

⁷⁶ Wolfram Westmeier. GAMMA-W. 2013. URL: <http://www.westmeier.com/3hpgesoftware.htm>.

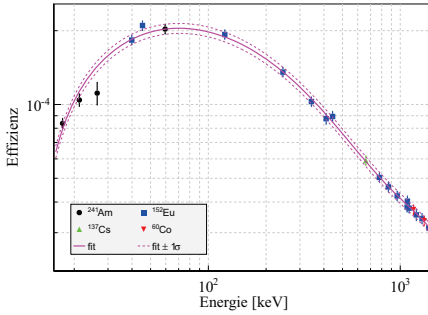
Isotopes,⁷⁴ und eine Wirkungsquerschnittsdatenbank, basierend auf der XCOM Photon Cross Section Database,⁷⁵ eingebunden. Durch das gemessene Gewicht und die benutzerdefinierten Abfallfasstypen wird eine mittlere Dichte berechnet. Anhand dieser Daten berechnet SCANNER32 die radionuklidspezifischen Aktivitäten gemäß dem in Abschnitt 4.3 vorgestellten analytischen Modell.

6.2 Routineeinstellungen für SGS-Messungen von konditionierten Abfällen

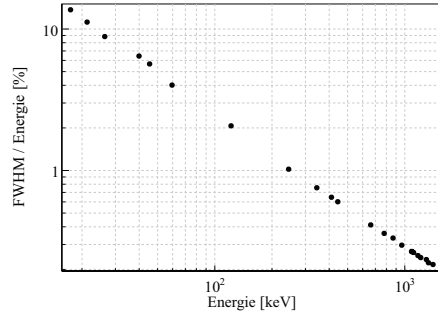
DIE ROUTINEEINSTELLUNG für eine SGS-Messung ist hinsichtlich der räumlichen Auflösung und der damit verbundenen Messzeit optimiert. Die Messzeit ist im Rahmen der Routinecharakterisierung der limitierende Faktor für eine Messung, weil sie sowohl die Grundlage für die Kosten als auch für den Durchsatz ist. Die Zeit für die Vermessung eines standardisierten 200l-Abfallfasses ist im Hinblick auf die industrielle Routineanwendungen auf 1 h bis zu maximal 2 h beschränkt. Ein standardisiertes 200l-Abfallfass ist 80 cm hoch und hat einen Durchmesser von 56 cm. Das Abfallfass wird aufgrund des zylindrischen Kollimationsfensters des Detektionssystems mit einem Durchmesser von 4 cm in 20 Segmente mit einer Höhe von jeweils $\Delta h = 4$ cm unterteilt. Während einer kontinuierlichen Fassrotation mit einer Rotationsgeschwindigkeit ω von 2° s $^{-1}$, werden im Standardscanmodus während der Rotation um einen Winkel $\Delta\theta$ von jeweils 30° Spektren aufgenommen. Die Messzeit pro Sektor t beträgt 15 s. Insgesamt ergibt dies bei 240 Sektoren eine Messzeit von 1 h. Für den Alternativscanmodus wird das Abfallfass mit einer Winkelgeschwindigkeit von nur 1° s $^{-1}$ rotiert und es werden Spektren über Winkelschritte von 15° bei derselben Messzeit von 15 s aufgenommen. Dieser Modus erlaubt bei einer Verdopplung der Messzeit auf 2 h eine deutlich bessere räumliche Auflösung der Radionuklidverteilung als der Standardscanmodus. Eine detaillierte Zusammenfassung aller Parameter für den Standard- und den Alternativscanmodus ist in Tabelle 6.1 zu finden.

6.3 Effizienzkalibration des Detektionssystems

DIE EFFIZIENZKALIBRATION DES DETEKTIONSSYSTEMS wird wie in Abschnitt 4.2 erklärt durchgeführt. Punktförmige Prüfstrahlern der Radionuklide ^{241}Am , ^{152}Eu , ^{137}Cs und ^{60}Co wurden in einer Entfernung von $d_0 = 63$ cm mit einer Unsicherheit von $\sigma_{d_0} = \pm 0,5$ cm vor dem Detektionssystem positioniert und jeweils für 48 h vermessen. Die Aktivitäten der Prüfstrahlern zum Zeitpunkt der Messung sind in Tabelle 6.2 zusammengefasst. Für die Effizienzkalibration werden nur γ -Linien berücksichtigt, die eine Emissionswahrscheinlichkeit von mindestens 1 % haben. Die Auswertung der γ -Spektren erfolgt mit der Routinesoftware GAMMA-W.⁷⁶ Gemäß den Gleichungen (4.1)



(a) Effizienz



(b) FWHM

und (4.2) kann die Unsicherheit auf die Effizienz durch

$$\sigma_e = \left[\left(\frac{\epsilon(E_\gamma, d_0)}{A_0} \cdot \sigma_{A_0} \right)^2 + \left(\frac{\epsilon(E_\gamma, d_0)}{Z_0(d_0)} \cdot \sigma_{Z_0} \right)^2 + \left(\frac{\epsilon(E_\gamma, d_0)}{d_0} \cdot \sigma_{d_0} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (6.1)$$

bestimmt werden. Abbildung 6.3 zeigt die Effizienz und die relativen Energieauflösungen als Funktion der Energie. Um die Effizienz bei beliebigen Energien zu bestimmen, wird die empirische Funktion

$$\epsilon(E_\gamma) = \sum_{i=1}^{10} \xi_i \cdot \log^i(E_\gamma) \quad (6.2)$$

an die gemessenen Effizienzpunkte angepasst. Das χ^2 pro Freiheitsgrad beträgt für diese Anpassung an insgesamt 23 Messpunkte ca. 1,37 und zeigt eine gute Übereinstimmung der Anpassung zwischen der Gleichung (6.2) und den gemessenen Effizienzen. Weil Gleichung (6.2) grundsätzlich empirisch motiviert ist, wird der 1σ -Unsicherheitsbereich der Effizienzkurve nicht durch die Unsicherheiten der Anpassungsparameter bestimmt, sondern durch Anpassung von Gleichung (6.2) an $\epsilon \pm \sigma_e$ abgeschätzt und liegt in diesem Fall nahezu unabhängig von der Energie im Bereich von 4 % bis 5 %. Bei der charakteristischen γ -Linie von ^{60}Co mit einer Energie von 1332 keV liegt die Energieauflösung mit 2,9 keV über den Herstellerangaben von 1,9 keV. Dies ist maßgeblich auf die unterschiedlichen Shaping-Times des Verstärkers von 6 μs für die Herstellerangaben und 4 μs für die hier gezeigte Effizienzkalibration zurückzuführen. Eine kürzere Shaping-Time erlaubt eine schnellere Prozessierung der Stromimpulse und somit weniger Totzeiten und führt aber gleichzeitig zu einer schlechteren Energieauflösung aufgrund der geringeren Statistik in den analysierten Pulsen⁷⁷. Bei der niederenergetischen γ -Linie von ^{241}Am bei 59,5 keV beträgt die Energieauflösung nur noch 2,38 keV.

Abbildung 6.3: Effizienzkalibration in (a) und relative Energieauflösung in (b) des im γ -Scan System Gernod II benutzten HPGe-Detektionssystems. Der Abstand zwischen Quelle und Detektor ist 63 cm. Die Kurven in magenta zeigen das empirische Effizienzmodell (durchgezogene Linie) und den Unsicherheitsbereich (gestrichelte Linie).

⁷⁷ siehe Abschnitt 3.5

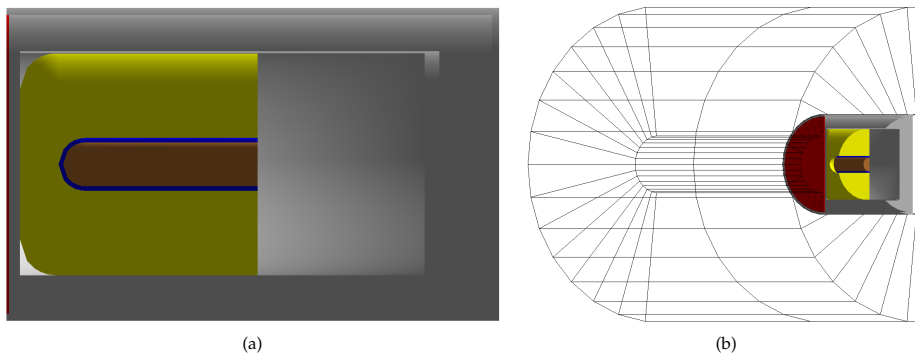


Abbildung 6.4: Geant4-Visualisierung des Detektionssystems mit und ohne Kollimator. Der Germaniumkristall in gelb befindet sich in einem Aluminiumgehäuse (grau). Im Inneren des Detektorkristalls befindet sich der rot-braune Kühlfinger aus Kupfer sowie der in blau gezeichnete Lithium-Kontakt. Das rote Eintrittsfenster besteht aus Beryllium. In a) ist der Detektor alleine und in b) mit dem Bleikollimator gezeigt.

⁷⁸ siehe Abschnitt 5.5

6.4 Detektorimplementation und Simulation von SGS-Messungen in Geant4

DAS DETEKTIONSSYSTEM ist anhand der Daten aus der technischen Zeichnung in die DetectorConstruction-Klasse der Geant4-Applikation übertragen worden⁷⁸. Abbildung 6.4 zeigt die mit Geant4 visualisierte Geometrie des implementierten Detektionssystems mit und ohne Kollimator. Informationen über die Rundungen des Detektorkristalls an der Frontfläche und über die Dicke des Kühlfingers, konnten aus der technischen Zeichnung nicht übernommen werden und mussten approximativ implementiert werden. Für die Effizienzkalibration des Detektionssystems wurde eine punktförmige Teilchenquelle in einem Abstand von $d_0 = 63$ cm axial zur Detektorfrontfläche platziert. Es wurden 200 Photonenergien gleichverteilt in $\log(E/E_0)$ im Bereich zwischen 10 keV und 1500 keV festgelegt. Für jede dieser Energien wurde ein Run mit 10^7 Primärphotonen simuliert. Die Impulsrichtungen der Primärphotonen wurden dabei in einen Kegel mit einem Öffnungswinkel von 4° zum Detektor gezwungen. Nach der Raumwinkelkorrektur entspricht dies einer Quellaktivität von 20,53 GBq. Die ermittelten Effizienzen sind zusammen mit dem Resultat der experimentellen Effizienzkalibration in Abbildung 6.5 dargestellt. Die Unsicherheiten der simulierten Effizienzen beruhen auf den Poisson-Fehlern der Zählrate für die entsprechende Energie. Die Effizienzkalibration in Geant4 weicht über den gesamten Energiebereich systematisch nach oben von der experimentell bestimmten Effizienzkalibration ab. Für den Energiebereich oberhalb von 45 keV beträgt die Abweichung rund 15 % bis 20 %. Im niedrigeren Bereich kann die Abweichung sogar bis zu 60 % betragen. Diese Diskrepanzen sind auf die zum Teil unvollständigen Angaben zur Detektorgeometrie durch den Hersteller und auf mögliche Totschichten des Kristalls zurückzuführen.⁷⁹ Bei der Implementierung des Detektionssystems wurde die Totschicht, die durch die Kontaktierung des Kristalls an der Außenseite zustande kommt, nicht berücksichtigt. Durch das Fehlen der äußeren Totschicht wird die Effizienz des Detektionssystems vor

⁷⁹ I. O. Ewa u. a. "Monte Carlo determination of full energy peak efficiency for a HPGe detector." In: *Applied Radiation and Isotopes* 55.1 (Juli 2001), S. 103–8.

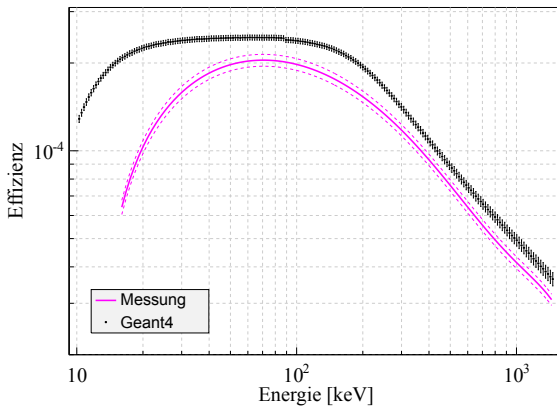


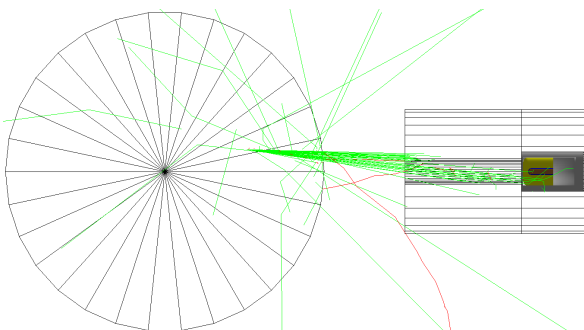
Abbildung 6.5: Vergleich der experimentellen und simulierten Effizienzen.

allem im Niederenergiebereich systematisch stark überschätzt. Grundsätzlich lassen sich daher die Abweichungen der experimentellen und simulierten Effizienz durch das Fehlen der Totschicht erklären. Es ist mittlerweile sogar eine gängige Technik die Dicke der Totschichten und andere unbekannte geometrische Parameter des Detektors durch Monte Carlo Simulationen zu bestimmen, indem diese Parameter so lange variiert werden, bis die optimale Übereinstimmung zwischen den simulierten und experimentell ermittelten Effizienzen erreicht worden ist.⁸⁰ Zum Teil konnte durch diese Anpassungen sogar eine Übereinstimmung von 0,2 % zwischen den experimentellen und den simulierten Effizienzen erreicht werden. Bei diesen Ansätzen werden allerdings die Einflüsse der Ladungssammlung, beziehungsweise der Signalverarbeitung, durch die entsprechende Nuklearelektronik auf die Effizienz des Detektionssystems vernachlässigt. Für die Simulation von SGS-Messungen ist eine exakte Übereinstimmung der experimentellen und simulierten Effizienzen nicht nötig, da lediglich sicher gestellt werden muss, dass das implementierte Detektionssystem ähnlich zu einem regulären HPGe-Detektionssystem funktioniert und seine Effizienzen hinsichtlich verschiedener Energien bekannt sind.

FÜR DIE SIMULATION VON SGS-MESSUNGEN wurde neben dem Detektionssystem ein Abschnitt eines Abfallfasses in Geant4 implementiert. Der Fassabschnitt ist ein Zylinder mit einer Höhe von 28 cm, was nach den Routineeinstellung für SGS-Messungen sieben Segmenten entspricht. Das Fasszentrum ist 63 cm von der Frontfläche des Detektors entfernt. Dies entspricht den Abmessungen wie sie für die experimentellen Messungen mit GERNOD II realisiert sind. Das Abfallfass verfügt über eine Wand aus Eisen mit einer Stärke von 1,5 mm. Die Abfallmatrix kann mit einem beliebigen Material homogen befüllt werden und es kann eine beliebige Quellgeometrie berücksichtigt werden. In Abbildung 6.6 ist die Geant4-Visualisierung des Detektionssystems mit dem Fassabschnitt gezeigt. Der Fassabschnitt ist mit

⁸⁰ R.G. Helmer u. a. "The use of Monte Carlo calculations in the determination of a Ge detector efficiency curve". In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A* 511.3 (Okt. 2003), S. 360–381; J. C. Hardy u. a. "Precise efficiency calibration of an HPGe detector: source measurements and Monte Carlo calculations with sub-percent precision." In: *Applied Radiation and Isotopes* 56.1-2 (2002), S. 65–9; N.Q. Huy, D.Q. Binh und V.X. An. "Study on the increase of inactive germanium layer in a high-purity germanium detector after a long time operation applying MCNP code". In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A* 573.3 (Apr. 2007), S. 384–388; J. Ródenas u. a. "Analysis of the influence of germanium dead layer on detector calibration simulation for environmental radioactive samples using the Monte Carlo method". In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A* 496.2-3 (Jan. 2003), S. 390–399.

Abbildung 6.6: Aufsicht des Setups für die Simulation von SGS-Messungen bestehend aus dem Fassabschnitt und dem Detektionssystem. Im Abfallfass befindet sich eine ^{60}Co -Punktquelle. Grüne Trajektorien gehören zu Photonen und rote Trajektorien zu Elektronen.



Polyethylen (PE) der Dichte $0,93\text{ g cm}^{-3}$ gefüllt. Im Fassabschnitt befindet sich eine ^{60}Co -Punktquelle. In einem Simulationsrun kann der Fassabschnitt mitsamt seiner Matrix und dem Radionuklidinventar in beliebigen Winkelschritten diskret rotiert werden, beziehungsweise in beliebigen Translationsschritten diskret in der Höhe verschoben werden.

6.5 Quantifizierung der Einhaltung von Kalibrationsbedingungen

DIE ABWEICHUNGEN der Radionuklid- und Matrixverteilung von den Kalibrationsbedingungen sind die größte Ursache für systematische Unsicherheiten in der radionuklidspezifischen Aktivitätsrekonstruktion anhand von SGS-Messungen⁸¹. Um die Einhaltung der Kalibrationsbedingungen durch konditionierte Abfälle zu überprüfen, wurden insgesamt 76 konditionierte Abfallfässer aus den deutschen Kernkraftwerken, die mit verpressten Abfallprodukten befüllt sind, γ -spektrometrisch analysiert. In Abbildung 6.7 a) sind alle Radionuklide aufgeführt, die in diesen Abfallfässern identifiziert worden sind. In allen außer zweien der Abfallfässer wurde das Schlüsselnuklid ^{60}Co ($T_{1/2} = 5,7\text{ yr}$) aus der Aktivierung von ^{59}Co mit thermischen Neutronen oder von ^{59}Ni mit schnellen Neutronen gefunden. Neben ^{60}Co wurden in knapp 10 % der Abfallfässer auch das Aktivierungsprodukt ^{54}Mn ($T_{1/2} = 312\text{ d}$) gefunden, dass durch die Aktivierung von ^{54}Fe mit schnellen Neutronen entsteht. In ungefähr 55 % der Abfallfässer konnte das Spaltprodukt und Schlüsselnuklid ^{137}Cs ($T_{1/2} = 30,1\text{ yr}$) nachgewiesen werden. In deutlich weniger Fässern konnten auch die kurzlebigen Spaltprodukte ^{110m}Ag ($T_{1/2} = 250\text{ d}$) und ^{125}Sb ($T_{1/2} = 2,76\text{ yr}$) nachgewiesen werden. In die insgesamt 76 Abfallfässer wurden 197 Presslinge eingebracht. In Abbildung 6.7 b) ist die Verteilung der Anzahl an Presslingen pro Fass gezeigt. Im Mittel wird ein Abfallfass somit mit vier Presslingen befüllt. Die Matrixdichten der Presslinge variiert im Wesentlichen zwischen $0,5\text{ g cm}^{-3}$ und $2,3\text{ g cm}^{-3}$ mit nur wenigen Ausnahmen oberhalb von $2,3\text{ g cm}^{-3}$ bis zu $3,0\text{ g cm}^{-3}$, wie in Abbildung 6.7 c)

⁸¹ siehe Abschnitt 4.4

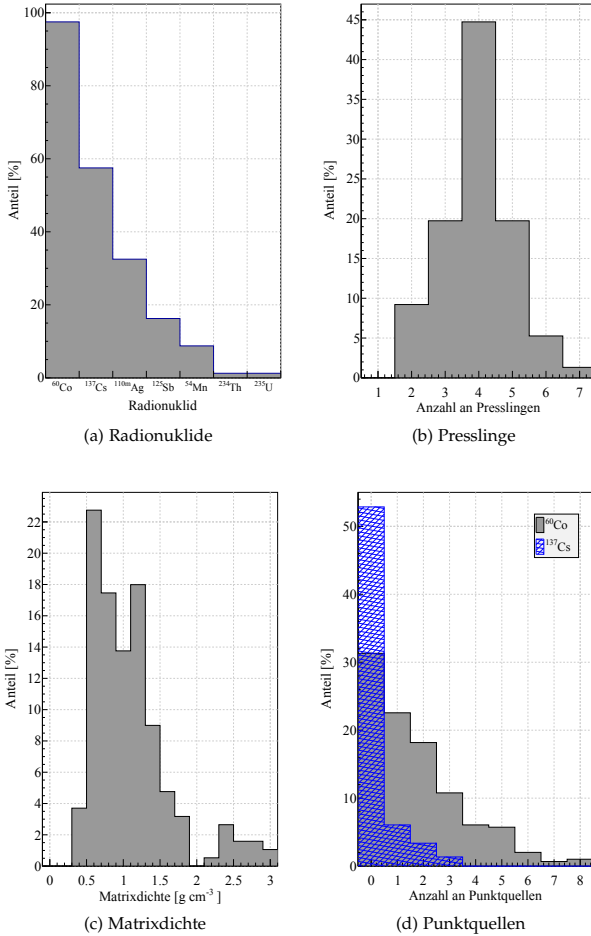


Abbildung 6.7: Häufigkeitsverteilungen der identifizierten Radionuklide für 76 konditionierte Abfallfässer in a) sowie die Anzahl der Presslinge je Abfallfass in b). In c) und d) sind die Häufigkeitsverteilungen für die Matrixdichten und die Anzahl an identifizierten Punktquellen je Pressling gezeigt.

gezeigt. Die Zählratenverteilungen für die Schlüsselnuklide ^{60}Co und ^{137}Cs wurden presslingweise auf lokale Maxima untersucht um räumliche Konzentrationen der Radionuklidverteilung (Punktquellen) zu identifizieren. Einer Verwechslung von lokalen Maxima mit statistischen Fluktuationen in der Zählratenverteilung wird vorgebeugt, indem gefordert wird, dass die Zählrate am gefunden Maximum Z_{\max} um mindestens 5σ von der minimalsten Zählrate Z_{\min}^i im i ten Pressling Abweicht:

$$Z_{\min}^i < Z_{\max} - 5 \cdot \sigma_{Z_{\max}}. \quad (6.3)$$

In Abbildung 6.7 d) sind die Ergebnisse dieser Analyse zusammengefasst. Bei Abfallfässern in denen ^{60}Co nachgewiesen wurde, lassen sich in rund 31 % der Presslinge keine signifikanten lokalen Maxima und somit keine Punktquellen identifizieren. Bei diesen Presslingen wird angenommen, dass sie über ein homogenes Radionuklidinventar von ^{60}Co verfügen. Es kann aber nicht ausgeschlossen werden, dass

Punktquellen durch ausreichend Matrixmaterial abgeschirmt sind und somit nicht nachgewiesen werden können. Im Falle von ^{137}Cs verfügen sogar rund 53 % der Presslinge in den Abfallfässer über eine scheinbar homogene Radionuklidverteilung. Hier ist allerdings zu beachten, dass in nur knapp 39 der Abfallfässer überhaupt ^{137}Cs nachgewiesen werden konnte. Für ^{60}Co wurden in knapp 15 % der Fälle sogar mehr als drei bis zu maximal acht Punktquellen in einem Pressling identifiziert. Für ^{137}Cs sind es auch immer noch rund 20 % der Presslinge, die mehr als drei Punktquellen aufweisen. Diese Studie zeigt, dass in ca. 69 % der Presslinge eine Abweichung von den Kalibrationsbedingungen für die Verteilung von ^{60}Co vorliegt. Es gibt weiterhin kein Abfallfass in dem alle Presslinge über ein vermeidliches homogenes ^{60}Co -Inventar verfügen. In einer Studie der Europäischen Kommission wurde ebenfalls gezeigt, dass innerhalb einer Stichprobe von ca. 1000 Abfallfässern, die im Forschungszentrum Jülich zwischen 1975 und 1988 γ -spektrometrisch untersucht wurden, nur rund 25 % den Kalibrationsbedingungen hinreichend genügten.⁸² Die restlichen 75 % der Abfallfässer weisen eine räumlich konzentrierte Radionuklidverteilung auf.

⁸² siehe: Sanden u. a., s. Anm. 33, Abschnitt 1.

7

SGSreco

INHALT:

7.1	Motivation, Konzept und Kalibrationsbedingungen	70
7.2	Input und Datenbanken	71
7.3	Berechnung von Zählratenverteilungen	74
7.3.1	<i>Numerische Berechnung des effektiven Raumwinkels</i>	76
7.3.2	<i>Analytische Berechnung des effektiven Raumwinkels</i>	79
7.3.3	<i>Implementation in SGSreco</i>	83
7.3.4	<i>Modellvalidierung</i>	84
7.3.5	<i>Gittergröße für die numerische Berechnung des effektiven Raumwinkels</i>	89
7.4	Aktivitätsberechnung bei homogenen Radionuklidinventaren	90
7.5	Rekonstruktionsalgorithmus	91
7.6	Statistische und systematische Unsicherheiten	95
7.7	Nachweisgrenzen - Maximal nicht-detektierbare Aktivitäten	96

7.1 Motivation, Konzept und Kalibrationsbedingungen

IN DEN LETZTEN KAPITELN wurde gezeigt, dass in einem Großteil der Abfallfässer, die im Forschungszentrum Jülich analysiert wurden, Punktquellen identifiziert werden konnten und daher die Kalibrationsbedingungen der konventionellen Aktivitätsrekonstruktion verletzt sind. Um die fehlerhafte Aktivitätsrekonstruktion durch die konventionellen Methoden zu vermeiden, wird mit SGSreco ein Analyse-Framework für die genaue und verlässliche Rekonstruktion von radionuklidspezifischen Aktivitätsinventaren anhand von SGS-Messungen entwickelt. Das Konzept von SGSreco beruht auf der Annahme, dass sich das Radionuklidinventar aus einem homogenen Anteil und aus Punktquellen (heterogener Anteil) zusammensetzt. Dies wird im Folgenden als idealisiertes Radionuklidinventar bezeichnet. Neben diesen grundlegenden Änderungen der Kalibrationsbedingungen werden auch im Vorhinein bekannte Informationen über die Matrixverteilung in einem Abfallfass berücksichtigt. Dies sind zum Beispiel Informationen über die Materialzusammensetzungen sowie über die Dichten einzelner Presslinge und über die Verteilung der Presslinge im Abfallfass. Ein Abfallfass wird im Höhenprofil somit in einzelne Fassabschnitte unterteilt, die unabhängig von einander durch SGSreco analysiert werden. SGSreco ist deshalb speziell auf die radionuklidspezifische Aktivitätsrekonstruktion für die folgenden Abfalltypen optimiert:

- Abfallfässer mit verpressten Abfallprodukten.
- Abfallfässer mit zementierten oder bituminierten Abfallprodukten.
- Abfallfässer mit abgeschirmten und nicht abgeschirmten Prüfstrahlern.

SGSRECO verfolgt zur radionuklidspezifischen Aktivitätsrekonstruktion einen inversen Ansatz. Eine Punktquelle in der Matrix des Abfallfasses ist in der zugehörigen Zählratenverteilung durch einen Peak zu erkennen. Die Position der Punktquelle beeinflusst dabei maßgeblich die Form dieses Peaks. Liegt eine Punktquelle beispielsweise nah am Zentrum des Abfallfasses, so ist der Peak in der Zählratenverteilung deutlich breiter als ein Peak, der durch eine Punktquelle nahe an der Wand des Abfallfasses generiert wird. Dadurch lässt sich die radiale Position einer Punktquelle relativ zum Fasszentrum anhand der Breite des Peaks abschätzen. Die Winkel- und Höhenposition der Punktquelle kann durch die Position des Peaksschwerpunkts in der Zählratenverteilung bestimmt werden. Das Ziel von SGSreco ist die Berechnung einer optimal mit der gemessenen Zählratenverteilung

$$\underline{\mathbf{Z}}(E_\gamma) = \begin{pmatrix} Z_{11}(E_\gamma) & \cdots & Z_{1n_{\text{seg}}}(E_\gamma) \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ Z_{n_{\text{seg}}1}(E_\gamma) & \cdots & Z_{n_{\text{seg}}n_{\text{seg}}}(E_\gamma) \end{pmatrix} \quad (7.1)$$

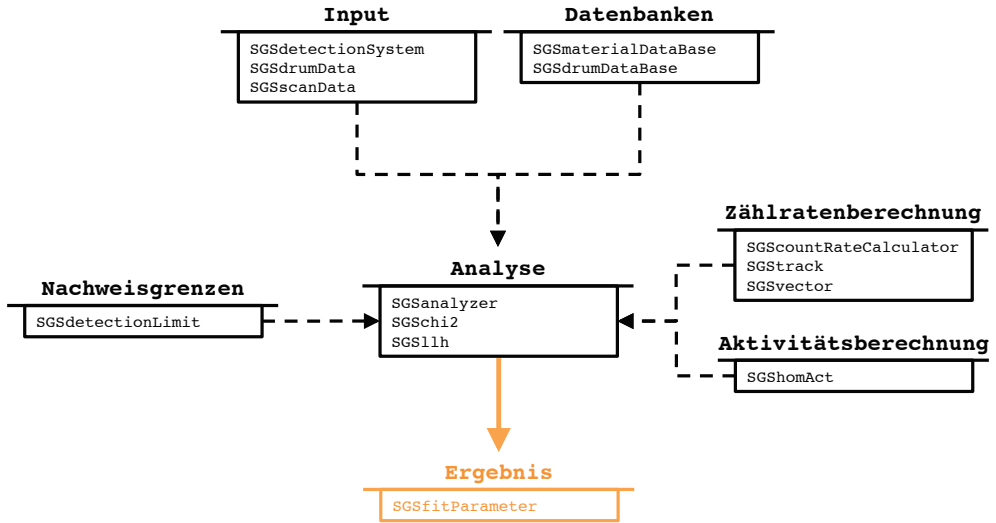


Abbildung 7.1: Ablaufdiagramm für das SGSreco-Framework.

übereinstimmenden Zählratenverteilung \mathbf{I} , die auf der Aktivität des homogenen Anteils des Radionuklidinventars sowie auf den Aktivitäten und Positionen der identifizierten Punktquellen basiert.⁸³

DAS SGSRECO-FRAMEWORK ist in C++ geschrieben und, wie in Abbildung 7.1 dargestellt, gegliedert. Die Input-Klassen definieren die geometrischen Daten des Abfallfasses und des Detektionssystems. Sie beinhalten weiterhin die gemessenen Zählratenverteilungen. In den Datenbank-Klassen sind die Massenschwächungskoeffizienten für vordefinierte Materialien hinterlegt, sowie die geometrischen Daten für standardisierte Abfallfässer. Diese Klassen bilden die Datengrundlage für SGSreco und werden den Analyse-Klassen übergeben. Die Analyse-Klassen steuern die Berechnung der optimal übereinstimmenden Zählratenverteilungen anhand eines physikalisch motivierten geometrischen Modells sowie die damit verbundenen Aktivitäten des heterogenen und des homogenen Radionuklidinventars. Nach einer entsprechenden Analyse werden die Ergebnisse in einer Ergebnis-Klasse gespeichert. In den folgenden Kapiteln werden die physikalischen Berechnungen und die Konzepte der einzelnen Klassen näher beschrieben.

7.2 Input und Datenbanken

DIE INPUT-KLASSEN dienen der Bereitstellung aller im Vorhinein bekannten Daten, die zur Aktivitätsrekonstruktion benötigt werden. In der Klasse SGSdetectionSystem werden alle geometrischen Parameter zur Beschreibung des Detektorkristalls, des Kollimationssystems

⁸³ T. Krings und E. Mauerhofer. "Reconstruction of the activity of point sources for the accurate characterization of nuclear waste drums by segmented gamma scanning." In: *Applied Radiation and Isotopes* 69.6 (Juni 2011), S. 880–9; T. Krings und E. Mauerhofer. "Reconstruction of the isotope activity content of heterogeneous nuclear waste drums." In: *Applied Radiation and Isotopes* 70.7 (Juli 2012), S. 1100–3.

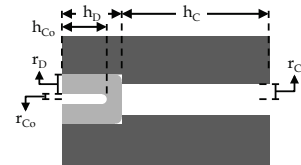


Abbildung 7.2: Schematische Zeichnung der Komponenten des Detektionssystems. In hellgrau ist der Detektorkristall und in dunkelgrau der Bleikollimator dargestellt.

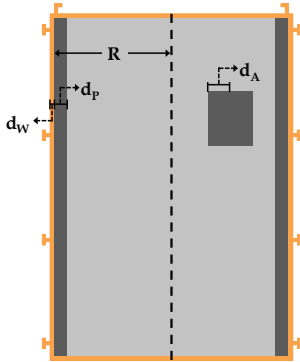


Abbildung 7.3: Geometrischer Aufbau der Komponenten eines Abfallfasses (Matrixabschnitte). In hellgrau ist die aktive Matrix in dunkelgrau die passive Matrix sowie ein Abschirmbehälter und in orange die Fasswand dargestellt.

⁸⁴ siehe Abschnitt 2.1

und der Fass-zu-Detektor Positionierung gespeichert. Zudem sind hier auch die Detektionseffizienzen hinterlegt. Die gespeicherten geometrischen Größen des Detektionssystems sind in Abbildung 7.2 dargestellt. Die Effizienzkalibration ist in Abschnitt 6.3 beschrieben.

IN DER KLASSE `SGSdrumData` werden alle Daten bezüglich des Abfallfasses gespeichert. Der geometrische Aufbau eines Abfallfasses, wie er in `SGSdrumData` berücksichtigt wird, ist in Abbildung 7.3 gezeigt. Jedes Abfallfass gliedert sich in eine aktive Matrix, in der die Radionuklide verteilt sind, in eine passiven Matrix, die der Abschirmung der Strahlung dient, und in eine Fasswand. Hinsichtlich der Abfälle aus der Forschung und der Industrie werden auch Abschirmbehälter für Prüfstrahler berücksichtigt. Besteht ein Fass beispielsweise aus mehreren Presslingen, so können die geometrischen Dimensionen der aktiven und passiven Matrix für die jeweiligen Fassabschnitte unterschiedlich sein. Neben den geometrischen Abmessungen werden auch die Materialzusammensetzung der aktiven sowie der passiven Matrix und das Gewicht von jedem Pressling sowie dessen Position im Abfallfass gespeichert. Da die Abfälle zum Verpressen in eine Metallkartusche gefüllt werden, entsteht durch die Wand der Kartusche eine passive Matrix⁸⁴. Die Dimension dieser passiven Matrix kann aus den im Vorhinein bekannten geometrischen Abmessungen der Presslinge bestimmt werden. Bei unverpressten Abfallprodukten wird das Gewicht der Matrix aus der Wägung des Abfallfasses bestimmt und die passive Matrix, sofern keine anderen Informationen vorliegen, ignoriert. Aus dem Gewicht des gesamten Fasses beziehungsweise der Presslinge lässt sich anschließend die Dichte der aktiven Matrix in den einzelnen Fassabschnitten oder im gesamten Abfallfass bestimmen. Aus der Presslingverteilung im Abfallfass kann eine Zuordnung der einzelnen vermessenen Segmente zu den Presslingen stattfinden und somit die Matrixkonfiguration für jeden Fassabschnitt bestimmt werden.

IN DER KLASSE `SGSscanData` werden alle Daten bezüglich des Scanmodus, der identifizierten Radionuklide und deren Zählratenverteilungen gespeichert. Zudem wird in der Klasse `SGSscanData` eine First-Guess Rekonstruktion zur Identifizierung von Punktquellen anhand der Zählratenverteilungen durchgeführt. In der First-Guess Rekonstruktion werden die Zählratenverteilungen für jede der n_γ identifizierten charakteristischen γ -Linie eines Radionuklids zur summierten Zählratenverteilung

$$\mathbf{I}_s = \sum_{i=0}^{n_\gamma} \mathbf{I}(E_{\gamma,i}) \quad (7.2)$$

addiert. Die Summation kann als eine gewichtete Mittelung der Zählratenverteilungen bezüglich der unterschiedlichen Emissions-, Detektions- und Absorptionswahrscheinlichkeiten aller charakteristischen γ -Linien eines Radionuklids verstanden werden. So kann eine Glättung von statistischen Schwankungen in den einzelnen Zählraten-

verteilungen erreicht werden. In der summierten Zählratenverteilung wird anschließend nach lokalen Maxima gesucht um Peaks zu identifizieren. Ein lokales Maximum wird als Peak akzeptiert, wenn die folgenden drei Kriterien erfüllt sind:

1. Die Zählrate im lokalen Maximum muss um mindestens 5σ von der kleinsten Zählrate im selben Fassabschnitt abweichen.
2. Die Zählrate im lokalen Maximum muss um mindestens 1σ vom Mittelwert der umliegenden vier Zählraten im selben Segment abweichen.
3. Um $180^\circ \pm 30^\circ$ verschoben zur Winkelposition des lokalen Maximums darf kein lokales Maximum mit einer höheren Zählrate sein.

Die ersten beiden Kriterien beugen der fälschlichen Identifizierung von Peaks aufgrund statistischer Schwankungen vor. Das dritte Kriterium dient der Vermeidung der Identifizierung von sogenannten Spiegelpeaks. Spiegelpeaks, wie in Abbildung 7.4 schematisch dargestellt, kommen immer dann zustande, wenn eine Punktquelle nach einer Rotation von 180° wieder in das Blickfeld des Detektionssystems kommt. Aufgrund der größeren Wegstrecke der Photonen durch die Matrix ist die Absorptionswahrscheinlichkeit in dieser Konfiguration allerdings deutlich größer und die Zählrate im Maximum des Spiegelpeaks ist deutlich geringer. Im Rahmen der First-Guess Rekonstruktion wird daher ein Satz von Winkel- und Höhenkoordinaten für jede gefundene Punktquelle bestimmt. An dieser Stelle kann die radiale Position der Punktquelle nicht bestimmt werden, da die Form eines einzelnen Peaks bei einer unaufgelösten Überlappung von anderen umliegenden Peaks oftmals nicht analysiert werden kann.

DIE DATENBANK-KLASSEN haben zwei unterschiedliche Hauptaufgaben. Zum einen dienen sie der Bereitstellung von geometrischen Daten zu bekannten Abfallfässern sowie Kartuschen (SGSdrumDataBase). Zum anderen dienen sie der Bereitstellung von energieabhängigen

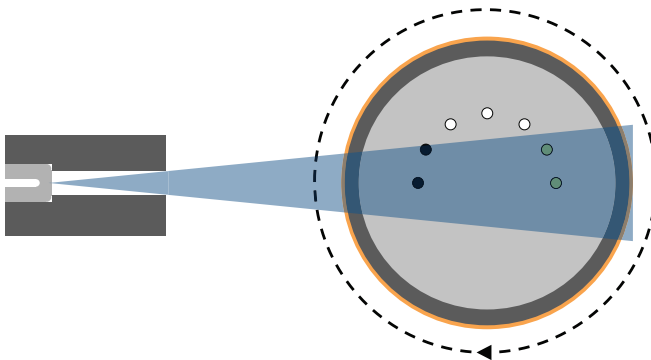


Abbildung 7.4: Schematische Darstellung zur Entstehung von Spiegelpeaks durch die Rotation des Abfallfasses. Der blaue Bereich ist das Sichtfeld des kollimierten Detektionssystems. Die Symbole zeigen die Positionen einer Punktquelle während der Fassrotation. Positionen mit geschlossenen Symbolen tragen zum Hauptpeak bei und Positionen mit grünen Symbolen tragen zum Spiegelpeak bei.

Massenschwächungskoeffizienten sowie von Dichten für verschiedene Elemente und vordefinierte Materialien (SGSmaterialDataBase). Die Massenschwächungskoeffizienten wurden aus der NIST XCOM: Photon Cross Sections Database⁸⁵ übernommen.

⁸⁵ Berger u. a., S. Anm. 41.

7.3 Berechnung von Zählratenverteilungen

DIE MATRIXELEMENTE T_{ij} der berechneten Zählratenverteilung \underline{T} setzen sich aus den Zählraten, die von einer homogenen Radionuklidverteilung beziehungsweise von den in der First-Guess Rekonstruktion identifizierten n_Q Punktquellen generiert wird, zusammen. Die Zählrate \bar{T} , die vom homogenen Anteil des Radionuklidinventars generiert wird, ist unabhängig von der Position des Detektionssystems und somit von den Segmenten i und den Sektoren j . Die Zählrate $T_{ij}(E_\gamma, \vec{r}, \mathcal{A})$, die von einer Punktquelle bei der Energie E_γ generiert wird, hängt von ihrer Position im Abfallfass \vec{r} , ihrer Aktivität \mathcal{A} und der Emissionswahrscheinlichkeit $p(E_\gamma)$ ab. Die Matrixelemente lassen sich für eine diskrete Fassrotation allgemein durch

$$T_{ij}(E_\gamma) = \bar{T}(E_\gamma) + \sum_{k=1}^{n_Q} T_{ij}(E_\gamma, \vec{r}_k, \mathcal{A}_k) \quad (7.3)$$

mit

$$T_{ij}(E_\gamma, \vec{r}, \mathcal{A}) = \tilde{\epsilon}(E_\gamma, \vec{r}) \cdot p(E_\gamma) \cdot \mathcal{A} \quad (7.4)$$

berechnen. Hierbei ist $\tilde{\epsilon}(E_\gamma, \vec{r})$ die Effizienz des Detektionssystems gegenüber einer Punktquelle an der Position \vec{r} im Abfallfass. Im Falle einer kontinuierlichen Fassrotation muss Gleichung (7.4) zu

$$T_{ij}(E_\gamma, \vec{r}, \mathcal{A}) = \frac{p(E_\gamma) \cdot \mathcal{A}}{n_\theta} \sum_{m=0}^{n_\theta} \tilde{\epsilon}(E_\gamma, \vec{r}(\theta_i + \Delta\theta_m)) \quad (7.5)$$

umgeschrieben werden. Die Summe versteht sich hier als eine numerische Integration beginnend bei $\theta_i - \Delta\theta/2$ bis $\theta_i + \Delta\theta/2$ in n_θ Schritten. In SGSreco wird n_θ je nach Scanmodus so festgelegt, dass die numerische Integration in 1°-Schritten innerhalb der beschriebenen Grenzen durchgeführt wird.

DAMIT EIN EMITTIERTES PHOTON vom Detektionssystem bei der zu erwartenden Energie E_γ registriert wird, müssen drei grundlegende Voraussetzungen erfüllt sein:

1. Das Photon darf nicht mit Materialien im Abfallfass, dem Kollimator oder anderen abschirmenden Strukturen in Wechselwirkung treten und dabei Energie verlieren.
2. Das Photon muss auf seiner Trajektorie den aktiven Detektorkristall treffen.
3. Das Photon muss seine komplette Energie im aktiven Detektorkristall deponieren.

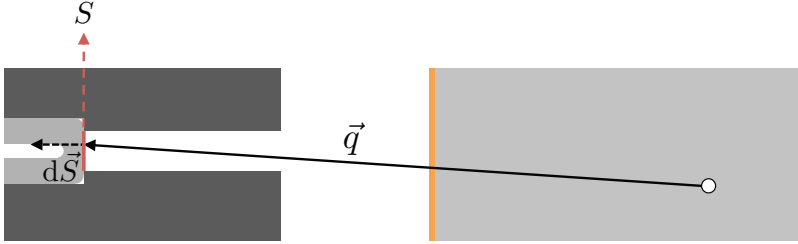


Abbildung 7.5: Schematische Zeichnung der geometrischen Parameter für die Berechnung des effektiven Raumwinkels.

Neben diesen grundlegenden Voraussetzungen müssen zur Berechnung von $\tilde{\epsilon}(E_\gamma, \vec{r})$ auch intrinsische Eigenschaften des Detektors und seiner Nuklearelektronik berücksichtigt werden. Dies beinhaltet die Berücksichtigung von möglichen Totschichten des Detektorkristalls, den Eigenschaften der Ladungssammlung im Detektorkristall und die Signalverarbeitung von der Vorverstärkung bis zur Pulshöhenanalyse im Vielkanalanalysator. Der Effizienzberechnung in SGSreco liegt daher ein semi-empirisches Modell zugrunde, das auf einer messtechnischen Effizienzkalibration des Detektionssystems beruht. Im Rahmen dieses Modells wird die Effizienz $\tilde{\epsilon}(E_\gamma, \vec{r})$ in SGSreco durch

$$\tilde{\epsilon}(E_\gamma, \vec{r}) = \epsilon(E_\gamma, d_0) \cdot \frac{\Omega(E_\gamma, \vec{r})}{\Omega_0(E_\gamma)} \quad (7.6)$$

berechnet. Der empirische Teil dieser Gleichung ist die Effizienz des Detektionssystems $\epsilon(E_\gamma, d_0)$ gegenüber einer Punktquelle bei einer Entfernung von d_0 zur Oberfläche des Detektionssystems⁸⁶. Der zweite Term in Gleichung (7.6) ist der sogenannte effektive Raumwinkel $\Omega(E_\gamma, \vec{r})$. Durch den effektiven Raumwinkel wird sowohl die Absorptionswahrscheinlichkeit der Photonen in der Abfallmatrix als auch der Raumwinkel, der der Punktquelle vom Detektionssystem aufgrund seiner Kollimation entgegengesetzt wird, berücksichtigt. Die Normierung $\Omega_0(E_\gamma)$ beschreibt den effektiven Raumwinkel unter den Bedingungen der Effizienzkalibration. Ein vergleichbares Konzept zur Berechnung der absoluten Effizienzen von Detektionssystemen bezüglich γ -Strahlung wurde erstmals durch L. Moens et al. im Jahr 1985 vorgestellt⁸⁷ und bildet die Grundlage für viele weitere Modelle zur Berechnung von Raumwinkeln oder Detektionseffizienzen auch im Bereich der Charakterisierung radioaktiver Abfälle.⁸⁸

FÜR DIE BERECHNUNG DES EFFEKTIVEN RAUMWINKELS müssen alle möglichen Trajektorien der Photonen von ihrem Entstehungsort bis zur Frontfläche des Detektorkristalls berücksichtigt werden. Sei S gemäß Abbildung 7.5 die Oberfläche des Detektorkristalls und \vec{q} eine Trajektorie der Photonen zum Detektorkristall, so lässt sich der effektive Raumwinkel durch

$$\Omega(E_\gamma, \vec{r}) = \iint_S \frac{\vec{q}}{|\vec{q}|^3} \cdot \vec{a}(E_\gamma, \vec{q}) \cdot \vec{b}(E_\gamma, \vec{q}) \cdot k(E_\gamma, \vec{q}) \cdot d\vec{S} \quad (7.7)$$

berechnen. Hier ist $d\vec{S}$ das vektorielle Flächenelement senkrecht auf S . Die Terme $\vec{a}(E_\gamma, \vec{q})$ und $\vec{b}(E_\gamma, \vec{q})$ berücksichtigen die Absorption

⁸⁶ siehe Abschnitt 6.3

⁸⁷ L. Moens u. a. "Calculation of the absolute peak efficiency of gamma-ray detectors for different counting geometries". In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 187.2-3 (Aug. 1981), S. 451-472.

⁸⁸ S. Jovanović u. a. "ANGLE: A PC-code for semiconductor detector efficiency calculations". en. In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 218.1 (Apr. 1997), S. 13-20; Bruggeman und Carhon, s. Anm. 60.

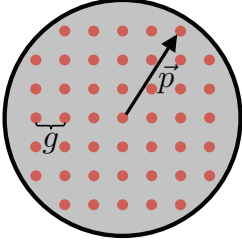


Abbildung 7.6: Schematische Darstellung der Verteilung von Gitterpunkten auf der Detektorfrontfläche für die numerischen Berechnung des effektiven Raumwinkels. Die graue Fläche zeigt die unkollimierte Frontfläche des Detektionssystems und die roten Symbole sind die Gitterpunkte.

der Strahlung im Abfallfass und im Kollimator. Durch $k(E_\gamma, \vec{q})$ wird die Absorptionswahrscheinlichkeit der Photonen im Detektorkristall berücksichtigt. Zur Lösung des Integrals eignen sich am besten numerische Methoden. Eine analytische Lösung lässt sich nur bei starken Vereinfachungen beziehungsweise Näherungen der einzelnen Terme erzielen. In den nächsten beiden Paragraphen werden daher die Berechnungen des effektiven Raumwinkels zum einen durch eine numerische Integration und zum anderen durch ein rein analytisches Modell dargestellt, und ihre Genauigkeit miteinander verglichen.

7.3.1 Numerische Berechnung des effektiven Raumwinkels

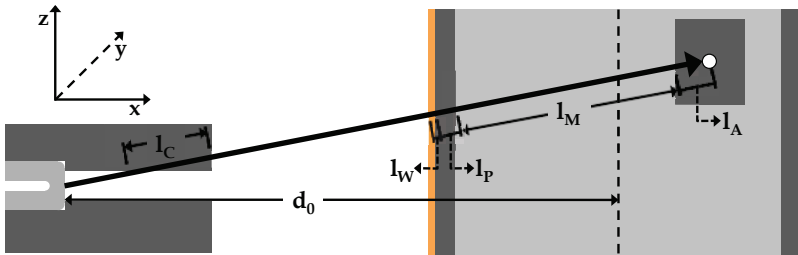
FÜR DIE NUMERISCHE INTEGRATION der Gleichung (7.7) werden auf der unkollimierten Frontfläche des Detektorkristalls S gleichverteilt n_g Punkte festgelegt, wie in Abbildung 7.6 schematisch gezeigt. Die aktive Frontfläche des Detektorkristalls ist oft größer als die Grundfläche des Kollimatorfensters. Die unkollimierte Frontfläche des Detektorkristalls ist aus diesem Grund der Teil der Detektorfrontfläche, der sich innerhalb des Kollimatorfensters befindet. Der Abstand zwischen zwei Punkten im Gitter wird als Gittergröße g bezeichnet. Trajektorien, die durch die Seitenfläche in den Detektor eindringen, werden nicht berücksichtigt, weil die Wahrscheinlichkeit, dass die Photonen vorher im Kollimator absorbiert werden, bei nahezu 1 liegt. Dieses Gitter definiert die Stützstellen der numerischen Integration, sodass Gleichung (7.7) zu

$$\Omega(E_\gamma, \vec{r}) = \sum_{i=1}^{n_g} \frac{1}{|\vec{q}_i|^2} \cdot a(E_\gamma, \vec{q}_i) \cdot b(E_\gamma, \vec{q}_i) \cdot k(E_\gamma, \vec{q}_i) \quad (7.8)$$

umgeschrieben wird.

BETRACHTET MAN EINE EINZIGE TRAJEKTORIE von der Punktquelle zur Detektoroberfläche, so muss entlang dieser Trajektorie die Absorptionswahrscheinlichkeit in den verschiedenen Medien berechnet werden. Abbildung 7.7 zeigt das geometrische Modell, welches den Berechnungen in SGSreco zugrunde liegt. Im Folgenden werden geometrische Größen bezüglich der Abschirmbehälter mit dem Index

Abbildung 7.7: Schematische Zeichnung zur Bestimmung der Weglängen des Photons auf seiner Trajektorie durch die einzelnen Matrixabschnitte und den Kollimator.



A , bezüglich der aktiven Matrix mit dem Index M , bezüglich der passiven Matrix mit dem Index P , bezüglich der Fassung mit dem Index W und bezüglich des Kollimators mit dem Index C versehen. Die Absorptionsterme $a(E_\gamma, \vec{q})$ und $b(E_\gamma, \vec{q})$ sind somit durch

$$a(E_\gamma, \vec{q}) = e^{-\mu_A(E_\gamma) \cdot l_A(\vec{q})} \cdot e^{-\mu_M(E_\gamma) \cdot l_M(\vec{q})} \cdot e^{-\mu_P(E_\gamma) \cdot l_P(\vec{q})} \cdot e^{-\mu_W(E_\gamma) \cdot l_W(\vec{q})} \quad (7.9)$$

$$b(E_\gamma, \vec{q}) = e^{-\mu_C(E_\gamma) \cdot l_C(\vec{q})} \quad (7.10)$$

mit den linearen Schwächungskoeffizienten $\mu(E_\gamma)$ gegeben. Das Koordinatensystem, das der Berechnung aller geometrischen Größen in den folgenden Abschnitten zugrunde liegt, hat seinen Ursprung im Zentrum der Frontfläche des Detektorkristalls. Die x -Achse ist zum Abfallfass hin gerichtet. Die Position einer Punktquelle wird relativ zum Boden des Abfallfasses durch die Zylinderkoordinaten (r_Q, φ_Q, z_Q) beschrieben und ist im zuvor definierten Koordinatensystem durch

$$\vec{r} = \begin{pmatrix} d_0 & - & r_Q \cdot \cos(\varphi_Q + \theta_i) \\ & & r_Q \cdot \sin(\varphi_Q + \theta_i) \\ & & z_Q - z_j \end{pmatrix} \quad (7.11)$$

gegeben. Der Winkel θ_i berücksichtigt die Fassrotation und die Höhe z_j berücksichtigt die vertikale Position des Detektionssystems während einer SGS-Messung. Somit müsste auch der Positionsvektor einer Punktquelle \vec{r} mit den Indizes i und j für die Position des Detektionssystems versehen sein, worauf zugunsten einer kompakteren Schreibweise verzichtet wird.

EINE TRAJEKTORIE von der Punktquelle im Abfallfass zu einem Punkt des Gitters, dessen Position gemäß Abbildung 7.6 durch \vec{p} beschrieben werden kann, ist dementsprechend durch

$$q: \vec{q}(\lambda) = \vec{p} + \lambda(\vec{p} - \vec{r}) \quad (7.12)$$

gegeben. Die Punktquelle befindet sich bei $\lambda = 1$ und die Frontfläche des Detektorkristalls bei $\lambda = 0$. Die Weglängen des Photons auf seiner Trajektorie q in den verschiedenen Matrixabschnitten l_A, l_M, l_P und l_W lassen sich aus der Berechnung der Schnittpunkte der Trajektorien q mit den Zylindern

$$A: d_A^2 = (x - r_x)^2 + (y - r_y)^2 \quad \forall z \quad (7.13)$$

$$M: d_M^2 = (x - d_0)^2 + y^2 \quad \forall z \quad (7.14)$$

$$P: d_P^2 = (x - d_0)^2 + y^2 \quad \forall z \quad (7.15)$$

$$W: d_W^2 = (x - d_0)^2 + y^2 \quad \forall z \quad (7.16)$$

bestimmen. Es lassen sich stets zwei Schnittpunkte der Trajektorie q und den Zylindern bei $\vec{q}(\lambda^+)$ und $\vec{q}(\lambda^-)$ mit $q_x(\lambda^+) > q_x(\lambda^-)$ beziehungsweise $\lambda^+ > \lambda^-$ finden, da sich die Quelle per Definition immer im Abfallfass und somit innerhalb aller Zylinder befindet. Einzig bei einer Trajektorie parallel zur z -Achse gibt es keine Schnittpunkte mit den Zylindern. Dieser Fall tritt allerdings niemals ein,

da eine solche Trajektorie zu keinem Zeitpunkt einer SGS-Messung zum Detektor führt. Die Weglängen der Trajektorie in den einzelnen Matrixabschnitten lassen sich aufgrund dieser Überlegungen durch

$$l_A = |\vec{q}(1) - \vec{q}(\lambda_A^-)| \quad (7.17)$$

$$l_M = |\vec{q}(\lambda_A^-) - \vec{q}(\lambda_M^-)| \quad (7.18)$$

$$l_P = |\vec{q}(\lambda_M^-) - \vec{q}(\lambda_P^-)| \quad (7.19)$$

$$l_W = |\vec{q}(\lambda_P^-) - \vec{q}(\lambda_W^-)| \quad (7.20)$$

berechnen.

FÜR DIE BERECHNUNG DER WEGLÄNGE IM KOLLIMATOR wird ähnlich zu der Berechnung der Weglängen in den Matrixabschnitten vorgegangen. Grundsätzlich ergibt sich die Weglänge der Trajektorie im Kollimator aus den Schnittpunkten der Trajektorie q mit dem Zylinder

$$C_Z : r_C^2 = y^2 + z^2 \quad \forall x, \quad (7.21)$$

der das zylindrische Kollimationsfenster beschreibt, und aus dem Schnittpunkt der Trajektorie mit der Ebene

$$C_F : x = h_C, \quad (7.22)$$

die die Frontfläche des Kollimators beschreibt. Da die Gitterpunkte stets innerhalb des Zylinders C_Z auf der Fläche S verteilt sind, ergeben sich drei charakteristische Trajektorien, wie sie in Abbildung 7.8 gezeigt sind. Die Trajektorie a) schneidet C_Z und führt dabei durch Kollimatormaterial, die Trajektorien b) schneidet C_Z und führt dennoch nicht durch Kollimatormaterial und die Trajektorie c) ist parallel zur x -Achse und hat daher keine Schnittpunkte mit C_Z . Die Weglänge der Trajektorie im Kollimator lässt sich für die Fälle a) und b) durch

$$l_C = |\vec{q}(\lambda_{C_Z}^+) - \vec{q}(\lambda_{C_F})|, \text{ wenn } |\vec{q}(\lambda_{C_Z}^+)| \leq h_C \quad (7.23)$$

$$l_C = 0, \text{ sonst} \quad (7.24)$$

berechnen. Der Schnittpunkt $q(\lambda_{C_Z}^-)$ ist dabei stets hinter der Frontfläche des Detektionssystems und spielt somit keine Rolle in der Berechnung. Sind, wie in Fall c), keine Schnittpunkte der Trajektorie mit dem Zylinder vorhanden, so ist $l_C = 0$.

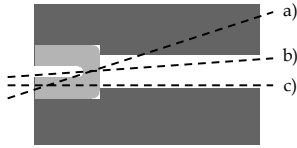


Abbildung 7.8: Charakteristische Trajektorien für die Bestimmung der Weglänge der Photonen im Kollimator.

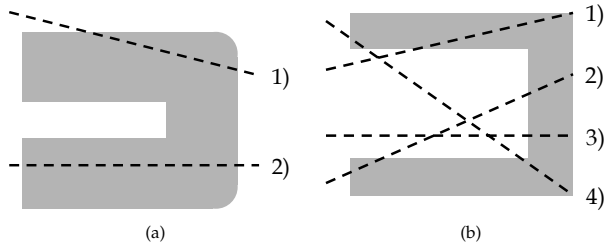


Abbildung 7.9: Schematische Darstellung der charakteristischen Trajektorien durch den Detektorkristall in a) und durch das Kühlloch in b).

DER KORREKTURTERM $k(E_\gamma, \vec{r})$ gibt an, mit welcher Wahrscheinlichkeit das einfallende Photon im Kristall absorbiert wird und ist durch

$$k(E_\gamma, \vec{q}) = f_D(l_{D1}) + f_{Co}(l_{Co}) \cdot f_D(l_{D2}) \quad (7.25)$$

mit

$$f_D(l_D) = 1 - e^{-\mu_D(E_\gamma) \cdot l_D(\vec{q})} \quad (7.26)$$

$$f_{Co}(l_{Co}) = e^{-\mu_{Co}(E_\gamma) \cdot l_{Co}(\vec{q})} \quad (7.27)$$

gegeben. Er basiert auf der Berechnung der Weglängen der Trajektorie im Detektorkristall (Index D) beziehungsweise im Kühlfinger (Index Co). Die Weglängen l_{D1} und l_{D2} sind die Weglängen der Trajektorien im Detektorkristall vor und nach dem Durchgang durch den Kühlfinger. Trifft die Trajektorie den Kühlfinger nicht, so ist $l_{D1} = l_D$ und $l_{D2} = 0$. Der Detektorkristall wird in dieser Berechnung als Zylinder, der durch

$$D_M: r_D^2 = y^2 + z^2 \quad (7.28)$$

$$D_F: x = 0 \quad (7.29)$$

$$D_R: x = -h_D \quad (7.30)$$

begrenzt ist, betrachtet. Das Kühlloch wird ebenfalls als Zylinder, der durch

$$Co_M: r_{Co}^2 = y^2 + z^2 \quad (7.31)$$

$$Co_F: x = -(h_D - h_{Co}) \quad (7.32)$$

$$Co_R: x = -h_D \quad (7.33)$$

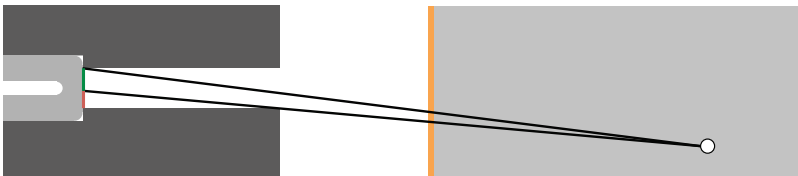
begrenzt ist, beschrieben. In den Abbildungen 7.9 a) und b) sind die charakteristischen Trajektorien durch den Detektorkristall beziehungsweise durch den Kühlfinger dargestellt. Die Weglängen l_{D1} , l_{D2} und l_{Co} lassen sich durch die Schnittpunkte mit den Begrenzungsflächen in den Gleichungen (7.28) bis (7.30) beziehungsweise (7.31) bis (7.33) unter Berücksichtigung der Fallunterscheidungen in den Abbildungen 7.9 a) und b) bestimmen.

7.3.2 Analytische Berechnung des effektiven Raumwinkels

FÜR DIE ANALYTISCHE BERECHNUNG des effektiven Raumwinkels wird angenommen, dass der effektive Raumwinkel durch

$$\Omega(E_\gamma, \vec{r}) = a(E_\gamma, \vec{q}) \cdot \Omega_{geo}(\vec{r}) + a(E_\gamma, \vec{q}_C) \cdot b(E_\gamma, \vec{q}_C) \cdot \Omega_{geo}^C(\vec{r}) \quad (7.34)$$

Abbildung 7.10: Schematische Darstellung des Schattenmodells zur Berechnung des geometrischen Raumwinkels, den der Detektor einer Punktquelle entgegensetzt. Die Detektorfrontfläche wird in einen grünen und in einen roten Bereich unterteilt. Die Strahlung kann den Detektor im grünen Bereich erreichen ohne, dass sie Kollimatormaterial durchqueren muss. Strahlung, die im roten Bereich auftrifft, muss Kollimatormaterial durchqueren.



beschrieben werden kann. Der erste Summand berücksichtigt dabei den Anteil der Strahlung, der ohne das Kollimatormaterial zu durchqueren zur Detektorfrontfläche gelangt und der zweite Summand berücksichtigt den Teil der Strahlung, der nach dem Durchgang durch das Kollimatormaterial trotzdem den Detektorkristall erreicht. Die Nomenklatur der Variablen ist gleichbedeutend mit der in der numerischen Berechnung in Gleichung (7.8). Der grundlegende Unterschied zu der numerischen Integration ist, dass in diesem Ansatz die Absorptionsberechnung im Abfallfass auf der Fernfeldnäherung für schmale Strahlenbündel beruht und somit lediglich zwei relevante Trajektorien zur Frontfläche des Detektionssystems

$$q : \quad \vec{q}(\lambda) = \lambda \vec{r} \quad (7.35)$$

$$q_C : \quad \vec{q}_C(\lambda) = \vec{p}' + \lambda(\vec{p}' - \vec{r}) \quad (7.36)$$

berücksichtigt werden. Die Trajektorie q wird für die Strahlung benutzt, die kein Kollimatormaterial durchquert, und die Trajektorie q_C wird für den Teil der Strahlung benutzt, der das Kollimatormaterial durchquert. Die Absorptionswahrscheinlichkeiten in den Matrixabschnitten $a(E_\gamma, \vec{q})$ beziehungsweise $a(E_\gamma, \vec{q}_C)$ und im Kollimatormaterial $b(E_\gamma, \vec{q}_C)$ berechnen sich somit analog zu den Gleichungen (7.9) und (7.10). Die Berechnung der geometrischen Weglängen der Trajektorien in den einzelnen Matrixabschnitten wird, wie auch schon in der numerischen Berechnung, durch die Bestimmung der Schnittpunkte der Trajektorien q und q_C mit den Zylinder (7.13), (7.14), (7.15) und (7.16) durchgeführt. Die Weglängen ergeben sich dadurch analog zu den Gleichungen (7.17) bis (7.20).

DIE BERECHNUNG DER GEOMETRISCHEN RAUMWINKEL $\Omega_{geo}(\vec{r})$ und $\Omega_{geo}^C(\vec{r})$ ist oftmals mit komplexen, analytisch teilweise nicht lösba- ren Integrationen verbunden. In dieser Arbeit werden die geometrische Raumwinkel durch ein analytisches Schattenmodell berechnet.⁸⁹ Dieses Modell wurde bereits im Rahmen einer Publikation veröffentlicht.⁹⁰ Das Schattenmodell lässt sich, wie in Abbildung 7.10 angedeutet, phänomenologisch leicht verstehen. Stellt man sich vor, dass am Ort der Punktquelle eine Taschenlampe ist, die in Richtung des Detektors strahlt, so wird durch die Kollimation ein Lichtkegel geformt, der die Frontfläche des Detektorkristalls ganz, nur zum Teil oder gar nicht ausleuchtet. Der ausgeleuchtete Anteil der Detektorfrontfläche, der in Abbildung 7.10 grün gekennzeichnet ist, definiert dabei den Raumwinkel $\Omega_{geo}(\vec{r})$, den der kollimierte Detektor der Punktquelle entgegensetzt. Der in Abbildung 7.10 rot gekennzeichnete Bereich der Detektorfrontfläche definiert den Raumwinkel $\Omega_{geo}^C(\vec{r})$, den der Detektor der Strahlung trotz der Kollimation entgegensetzt. Bei dieser Berechnung wird somit explizit angenommen, dass der geometrische Raumwinkel $\Omega_{geo}(\vec{r})$ zu 0 berechnet wird, wenn es keine mögliche Trajektorie gibt, die ohne den Kollimator zu durchlaufen auf die Detektorfrontfläche trifft. Der geometrische Raumwinkel ist allgemein

⁸⁹ S. J. Cipolla. "Calculating the solid angle for different source shapes and orientations as viewed by a detector with a cylindrical collimator". In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A* 579.1 (Aug. 2007), S. 268–271; W. J. Gallagher und S. J. Cipolla. "A method for accurately determining the thickness dimensions and photon-intensity corrections of a thick, covered, photon source". In: *Nuclear Instruments and Methods* 125.2 (Apr. 1975), S. 269–276; J. J. Steyn, D. G. Andrews und M. Dixmier. "Collimated detector response to point, line and plane sources". In: *Nuclear Instruments and Methods* 74.1 (Okt. 1969), S. 123–131.

⁹⁰ Krings und Mauerhofer, "Reconstruction of the activity of point sources for the accurate characterization of nuclear waste drums by segmented gamma scanning.", s. Anm. 83.

durch

$$\Omega_{geo}(\vec{r}) = \iint_S \frac{\vec{q}}{|\vec{q}|^3} \cdot d\vec{S} \quad (7.37)$$

analog zu Gleichung (7.7) definiert. Wird eine Punktquelle, wie für die Effizienzkalibration, vor dem Detektionssystem platziert, so ergibt sich der geometrische Raumwinkel zu

$$\Omega_{geo}(d_0) = 2\pi \left(1 - \frac{d_0}{\sqrt{d_0^2 - r_C^2}} \right). \quad (7.38)$$

Entwickelt man das Ergebnis für $d_0 \gg r_C$, wie es bei SGS-Messungen üblich ist ($d_0 = 63 \text{ cm}$ und $r_C = 2 \text{ cm}$), so ist der geometrische Raumwinkel durch

$$\Omega_{geo}(d_0) \approx \frac{S_D}{d_0^2}, \quad (7.39)$$

mit dem Flächeninhalt der Detektorfrontfläche $S_D = \pi r_C^2$ gegeben. Nimmt man an, dass sich eine Punktquelle an einer beliebigen Position \vec{r} im Abfallfass befindet, so ergeben sich die geometrischen Raumwinkel zu

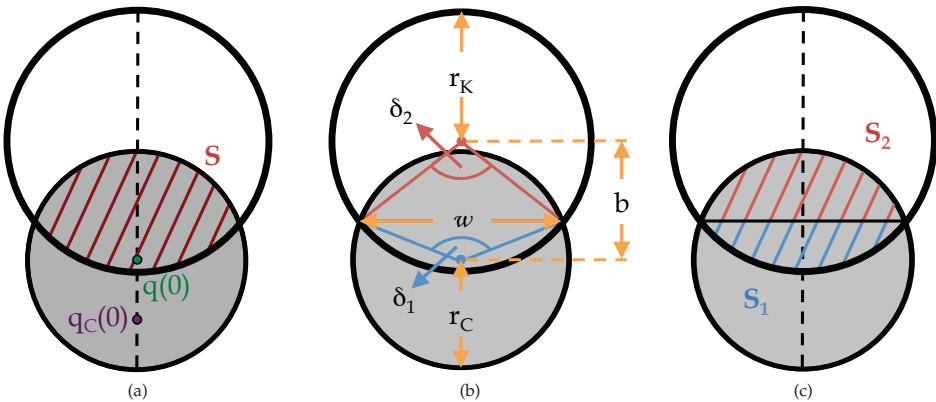
$$\Omega_{geo}(\vec{r}) = \frac{S(\vec{r})}{|\vec{r}|^2}, \quad (7.40)$$

$$\Omega_{geo}^C(\vec{r}) = \frac{S_D - S(\vec{r})}{|\vec{r}|^2}. \quad (7.41)$$

Hier beschreibt $S(\vec{r})$ den im Rahmen des Schattenmodells ausgeleuchteten Teil der Frontfläche des Detektorkristalls. Diese Gleichungen sind allerdings nur gültig, weil der Winkel zwischen \vec{r} und $d\vec{S}$ wegen $d_0 \gg r_C$ klein ist. Abbildung 7.11 a) zeigt eine geometrische Zeichnung des Überlappungsbereichs der Detektorfrontfläche S und des durch die Kollimation geformten Sichtkegels K . Alle geometrischen Größen zur Berechnung von $S(\vec{r})$ sind in den Abbildungen 7.11 b) und c) definiert. Die Projektion des Sichtkegels K auf die Ebene D_F aus Gleichung (7.29) lässt sich durch

$$K: \quad r_K^2 \geq y^2 + (z - b)^2 \quad \wedge \quad x = 0 \quad (7.42)$$

Abbildung 7.11: Schematische Zeichnung der Überlappungsflächen des durch die Kollimation geformten Strahlungskegels und des Detektors im Rahmen des Schattenmodells.



mit

$$b = \frac{h_C}{r_x - h_C} \cdot \sqrt{r_y^2 + r_z^2}, \quad (7.43)$$

$$r_K = \frac{|\vec{r}|}{|\vec{r}| - h_C} \cdot r_C \quad (7.44)$$

beschreiben. Hier ist r_K der Radius der Fläche K und b ist der Abstand der beiden Mittelpunkte der Flächen S und K . Weiterhin sind r_x , r_y und r_z die Komponenten des Positionsvektors \vec{r} der Punktquelle im Abfallfass in kartesischen Koordinaten. Die Fläche S ist durch

$$S: r_C^2 \geq y^2 + z^2 \quad \wedge \quad x = 0 \quad (7.45)$$

gegeben. Bei der Definition des Kreises K wurde vorausgesetzt, dass K immer parallel zur z -Achse gegenüber der Detektorfrontfläche um b verschoben ist. Diese Annahme kann aufgrund der Rotationssymmetrie des Problems bezüglich der x -Achse getroffen werden. Bei jeder Berechnung des effektiven Raumwinkels wird das Koordinatensystem deshalb so um die x -Achse gedreht, dass der Versatz b der beiden Kreise S und K parallel zur z -Achse ist. Die Fläche $S(\vec{r})$ ist dann der Überlappungsbereich der Flächen S und K . Grundsätzlich müssen drei Fälle zur Berechnung von $S(\vec{r})$ berücksichtigt werden:

Kompletter Überlapp:

$$S(\vec{r}) = \pi r_C^2 \quad \text{wenn} \quad b \leq r_K - r_C \quad (7.46)$$

Teilweiser Überlapp:

$$0 < S(\vec{r}) < \pi r_C^2 \quad \text{wenn} \quad r_K - r_C < b < r_K + r_C \quad (7.47)$$

Kein Überlapp:

$$S(\vec{r}) = 0 \quad \text{wenn} \quad b \geq r_K + r_C \quad (7.48)$$

Wie in Abbildung 7.11 c) gezeigt, kann $S(\vec{r})$ durch die Flächeninhalte der beiden Kreissegmente S_1 und S_2 , die durch S beziehungsweise K aufgespannt werden, berechnet werden. Die Flächeninhalte der Kreissegmente sind durch

$$S_1 = \frac{r_C^2 \cdot \delta_1}{2} - \frac{w}{2} \cos\left(\frac{\delta_1}{2}\right) r_C \quad (7.49)$$

$$S_2 = \begin{cases} \pi r_C^2 - \bar{S}_2, & \text{wenn } b \leq \cos\left(\frac{\delta_2}{2}\right) r_K \\ \bar{S}_2, & \text{sonst} \end{cases} \quad (7.50)$$

mit

$$\bar{S}_2 = \frac{r_K^2 \cdot \delta_2}{2} - \frac{w}{2} \cos\left(\frac{\delta_2}{2}\right) r_K \quad (7.51)$$

$$\delta_1 = 2 \cdot \arcsin\left(\frac{w}{2r_C}\right) \quad (7.52)$$

$$\delta_2 = 2 \cdot \arcsin\left(\frac{w}{2r_K}\right) \quad (7.53)$$

gegeben. Die Länge der Sehne w ist durch die Schnittpunkte der Begrenzungen der Kreisflächen S und K durch

$$w = \sqrt{4r_K^2 - \frac{(r_C^2 - r_K^2 - b^2)^2}{b^2}} \quad (7.54)$$

gegeben. Der Vektor \vec{p}' , der zur Berechnung der Trajektorie q_C und somit auch zur Absorptionswahrscheinlichkeit im Kollimatormaterial benötigt wird, ist durch

$$\vec{p}' = \frac{1}{2} \cdot (b - r_K + r_C) \cdot \frac{r_x \cdot \hat{e}_x + r_y \cdot \hat{e}_y}{|r_x \cdot \hat{e}_x + r_y \cdot \hat{e}_y|} \quad (7.55)$$

mit den kartesischen Einheitsvektoren \hat{e}_x und \hat{e}_y gegeben. Zusammenfassend können die geometrische Raumwinkel somit durch

$$\Omega_{geo}(\vec{r}) = \frac{1}{|\vec{r}|^2} \times \begin{cases} \pi r_C^2 & b \leq r_K - r_C \\ S_1 + S_2 & r_K - r_C < b < r_K + r_C \\ 0 & b \geq r_K + r_C \end{cases} \quad (7.56)$$

und

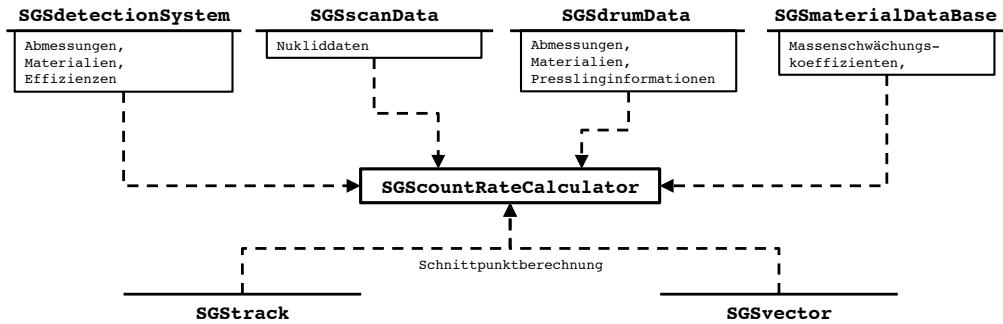
$$\Omega_{geo}^C(\vec{r}) = \frac{\pi r_C^2}{|\vec{r}|^2} - \Omega_{geo}(\vec{r}) \quad (7.57)$$

berechnet werden.

7.3.3 Implementation in SGSreco

DIE IMPLEMENTATION der Berechnungen für die Matrixelemente T_{ij} in SGSreco nach Gleichung (7.3) erfolgt wie in Abbildung 7.12 dargestellt. Die Klassen `SGSdetectionSystem` und `SGSdrumData` bilden die Datengrundlage für alle benötigten Informationen bezüglich der geometrischen Abmessungen sowie der Materialzusammensetzung aller Matrixabschnitte und des Detektionssystems. Die Klassen `SGSscanData` und `SGSmaterialDataBase` bilden die Datengrundlage für Nuklidaten beziehungsweise die Massenschwächungskoeffizienten. Diese Informationen werden der zentralen Klasse

Abbildung 7.12: Ablaufdiagramm für die Berechnung von Zählratenverteilungen in SGSreco



SGScountRateCalculator übergeben, in der durch die Funktion SetModel(int) zwischen dem analytischen und dem numerischen Modell gewählt werden kann. Die Schnittpunktberechnung der Trajektorien mit den Ebenen und Zylindern wird, wie sie in den letzten beiden Abschnitten vorgestellt wurde, durch die beiden Hilfsklassen SGStrack und SGSvector durchgeführt.

7.3.4 Modellvalidierung

E_γ [keV]	p_γ [%]
1408	21,005
1112	13,644
964	14,605
779	12,942
344	26,500
122	38,580

Tabelle 7.1: Charakteristische γ -Energien und Emissionswahrscheinlichkeiten der in der Geant4-Applikation implementierten ^{152}Eu Punktquelle.

DIE VALIDIERUNG des numerischen und des analytischen Modells zur Berechnung von Zählratenverteilungen, wird durch Vergleiche mit simulierten Zählratenverteilungen durchgeführt. Es wurde dazu eine ^{152}Eu -Punktquelle ausgewählt, da die charakteristischen γ -Linien von ^{152}Eu den für SGS-Messungen wichtigen Energiebereich von rund 100 keV bis zu 1500 keV gut abdecken. Die Energien und die relativen Emissionswahrscheinlichkeiten, wie sie für ^{152}Eu in der Geant4 Applikation implementiert wurden, sind in Tabelle 7.1 zusammengefasst. Um den Einfluss der Absorptionsberechnungen im Abfallfass von dem Einfluss der Berechnungen des geometrischen Raumwinkels bei der Berechnung des effektiven Raumwinkels zu trennen, wurde jeweils ein Set an Simulationen mit und ohne einem Abfallfass durchgeführt. In jedem dieser Sets wurden insgesamt fünf Runs simuliert, die sich in der Positionierung der Punktquelle unterscheiden. Die Punktquelle wurde dazu bei $\varphi_Q = 0^\circ$ und $z_Q = 2\text{ cm}$ an fünf unterschiedlichen radialen Positionen $r_Q \in \{5\text{ cm}, 10\text{ cm}, 15\text{ cm}, 20\text{ cm}, 25\text{ cm}\}$ positioniert. In jedem Run wurden Spektren bei Rotationswinkelschritten von 2° simuliert, um ausreichend Datenpunkte für die Validierung zu generieren. In den Runs in denen ein Abfallfass berücksichtigt wurde, wurde die Quelle in einem Abschirmbehälter aus Blei mit einer Wandstärke von 1 cm platziert. Der Abschirmbehälter wird in einer Matrix aus PE mit einer Dichte von $0,5\text{ g cm}^{-3}$ eingebettet. Zusätzlich wurde eine passive Matrix mit einer Dicke von 1 cm aus Eisen angenommen. Die simulierten Zählraten wurden auf die Aktivität der Punktquelle und die Emissionswahrscheinlichkeit der γ -Linie normiert, sodass sich ein Effizienzfeld ergibt. Für die numerische Berechnung wird ein Gitterabstand von 2 mm vorausgesetzt.

IM ERSTEN SCHRITT DER VALIDIERUNG werden die Effizienzfelder als Funktion des Rotationswinkels θ ohne die Berücksichtigung der Absorption im Abfallfass analysiert. Abbildungen 7.13 und 7.14 zeigen die simulierten und die analytisch sowie numerisch berechneten Effizienzfelder für alle berücksichtigten charakteristischen γ -Linien von ^{152}Eu . Der Vergleich zeigt, dass sich bei Energien oberhalb von 779 keV unabhängig von der Position der Quelle eine sehr gute Übereinstimmung der simulierten Daten mit den numerisch berechneten Daten erzielen lassen. Zwischen den simulierten Daten und den analytisch berechneten Daten lässt sich grundsätzlich eine gute Übereinstimmung finden, wenn die Punktquelle bei $\theta \approx 0^\circ$ beziehungsweise

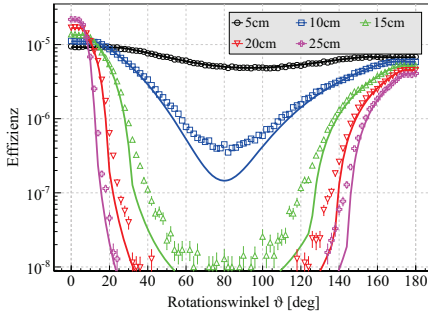
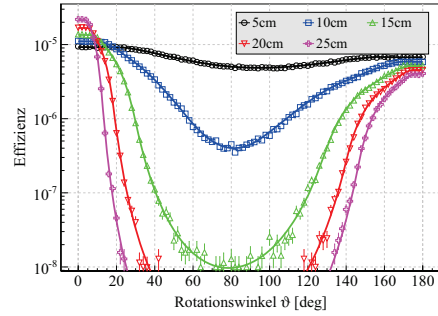
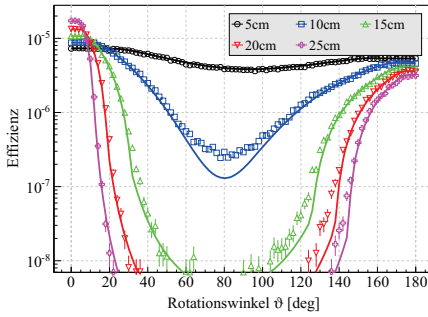
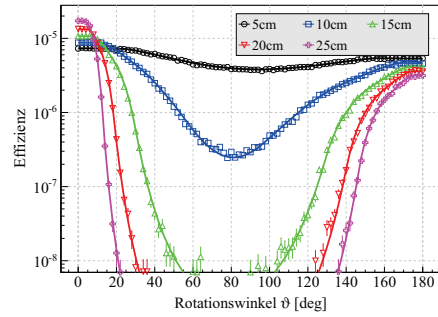
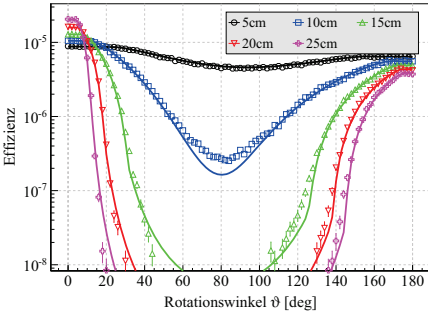
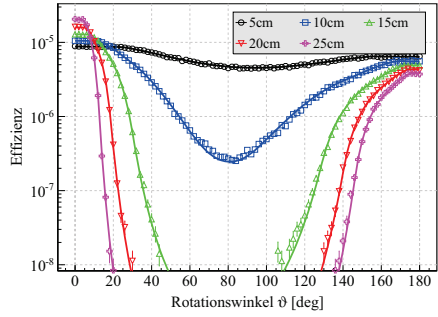
(a) analytisch, $E_\gamma = 1408$ keV(b) numerisch, $E_\gamma = 1408$ keV(c) analytisch, $E_\gamma = 1112$ keV(d) numerisch, $E_\gamma = 1112$ keV(e) analytisch, $E_\gamma = 964$ keV(f) numerisch, $E_\gamma = 964$ keV

Abbildung 7.13: Vergleich zwischen simulierten (Symbole) mit den aus SGSreco (Linien) numerisch und analytisch berechneten Effizienzfeldern für eine ^{152}Eu -Punktquelle ohne Berücksichtigung eines Abfallfasses. ($E_\gamma \geq 964$ keV)

bei $\theta \approx 180^\circ$ im Sichtfeld des Detektors ist. Es lassen sich hingegen systematische Abweichungen feststellen, wenn die Punktquelle weit außerhalb des Sichtfeldes des Detektors bei ungefähr $20^\circ < \theta < 160^\circ$ ist. Diese systematischen Abweichungen sind auf die starken Vereinfachungen zurückzuführen, mit denen der effektive Raumwinkel für Photonen, die das Kollimatormaterial durchqueren, berechnet wurde. Bei niedrigen γ -Energien zeigt sich allerdings auch im numerischen Modell eine systematische Abweichung, wenn die Quelle außerhalb des Sichtfeldes des Detektors ist. Dies ist durch die ideali-

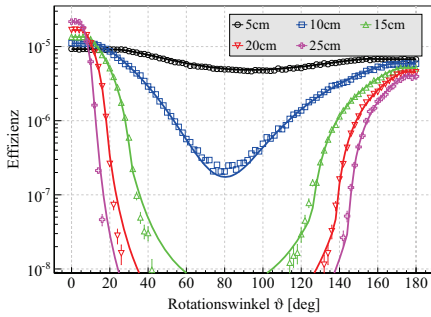
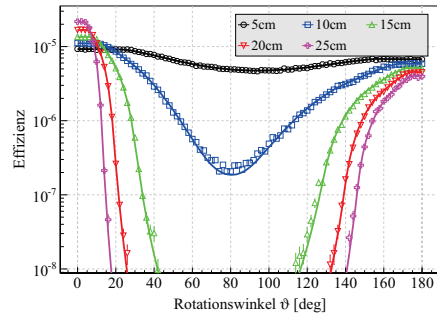
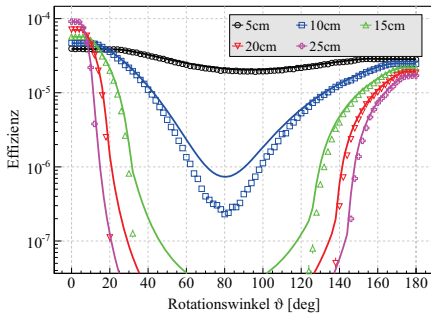
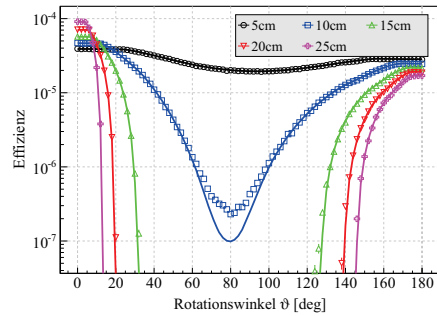
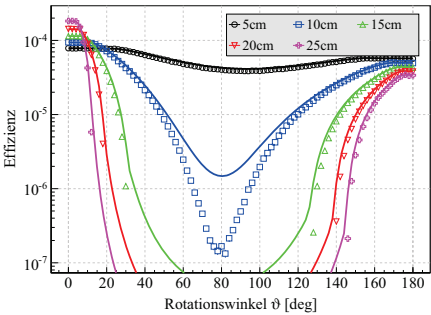
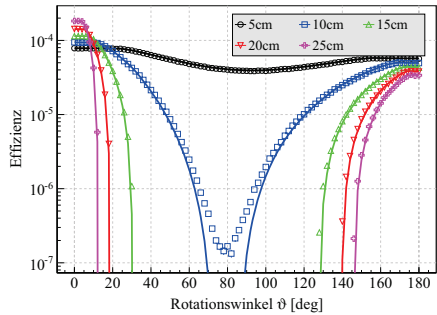
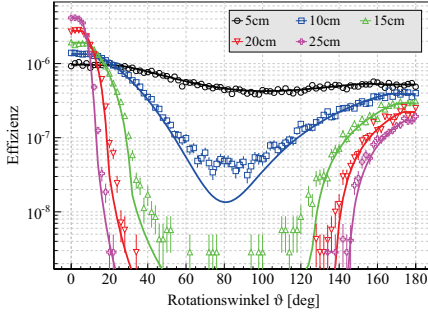
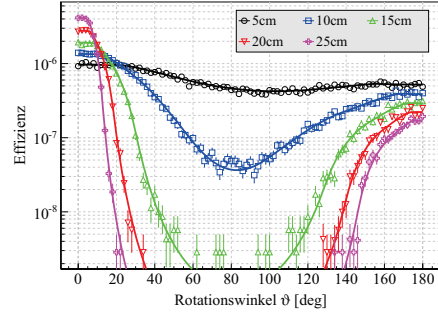
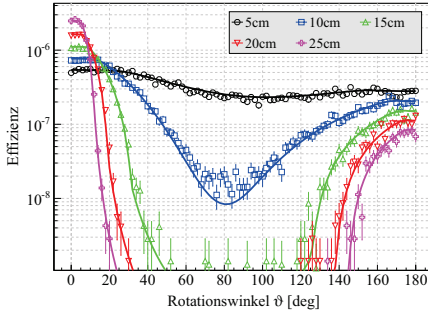
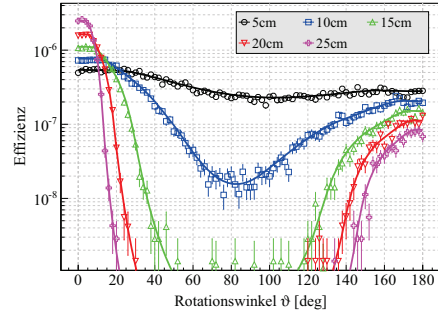
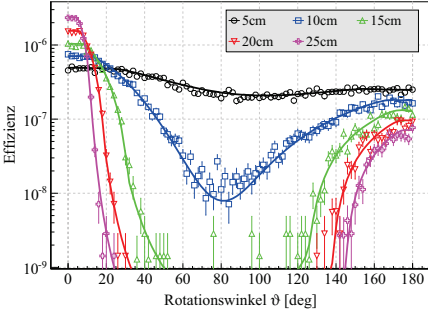
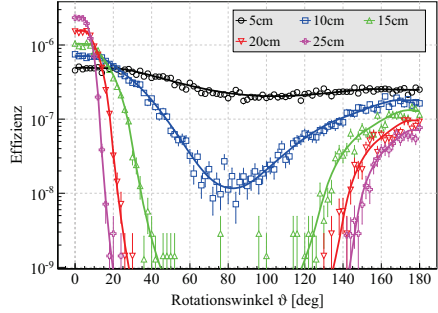
(a) analytisch, $E_\gamma = 779$ keV(b) numerisch, $E_\gamma = 779$ keV(c) analytisch, $E_\gamma = 344$ keV(d) numerisch, $E_\gamma = 344$ keV(e) analytisch, $E_\gamma = 122$ keV(f) numerisch, $E_\gamma = 122$ keV

Abbildung 7.14: Vergleich zwischen simulierten (Symbole) mit den aus SGSreco (Linien) numerisch und analytisch berechneten Effizienzfeldern für eine ^{152}Eu -Punktquelle ohne Berücksichtigung eines Abfallfasses. ($E_\gamma \leq 779$ keV)

sierte Implementation des Detektorkristalls und seines Gehäuses in der Berechnung zu erklären. Damit ist unter anderem die Näherung des Kühlloches durch einen Zylinder, das Weglassen der abgerundeten Ecken an der Frontfläche des Detektorkristalls und die fehlende Berücksichtigung des Gehäuses für Photonen, die nicht senkrecht durch die Frontfläche des Kristalls eindringen, gemeint. Außerdem werden keine Trajektorien berücksichtigt, die den Detektor über die Außenflächen penetrieren. Da bei niedrigen Energien die Absorpti-

(a) analytisch, $E_\gamma = 1408$ keV(b) numerisch, $E_\gamma = 1408$ keV(c) analytisch, $E_\gamma = 1112$ keV(d) numerisch, $E_\gamma = 1112$ keV(e) analytisch, $E_\gamma = 964$ keV(f) numerisch, $E_\gamma = 964$ keV

onswahrscheinlichkeit deutlich höher ist, verändert sich der effektive Raumwinkel bei bereits kleinen Idealisierungen oder geometrischen Ungenauigkeiten sehr stark.

IM ZWEITEN SCHRITT DER VALIDIERUNG wird nun die Absorption in allen Matrixabschnitten berücksichtigt. Abbildungen 7.15 und 7.16 zeigen die simulierten und die analytisch sowie numerisch berechneten Effizienzfelder für alle berücksichtigten charakteristischen γ -Linien von ^{152}Eu oberhalb von 344 keV. Die beiden niederenergeti-

Abbildung 7.15: Vergleich zwischen simulierten (Symbole) mit den aus SGSreco (Linien) numerisch und analytisch berechneten Effizienzfeldern für eine ^{152}Eu -Punktquelle unter Berücksichtigung der Absorption in allen Matrixabschnitten. ($E_\gamma \geq 964$ keV)

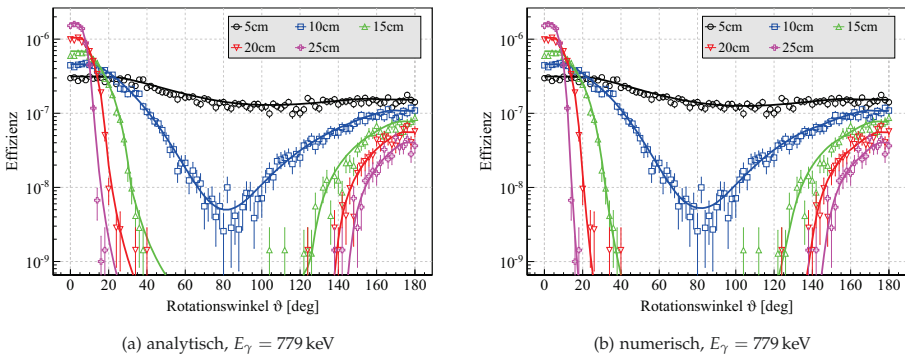


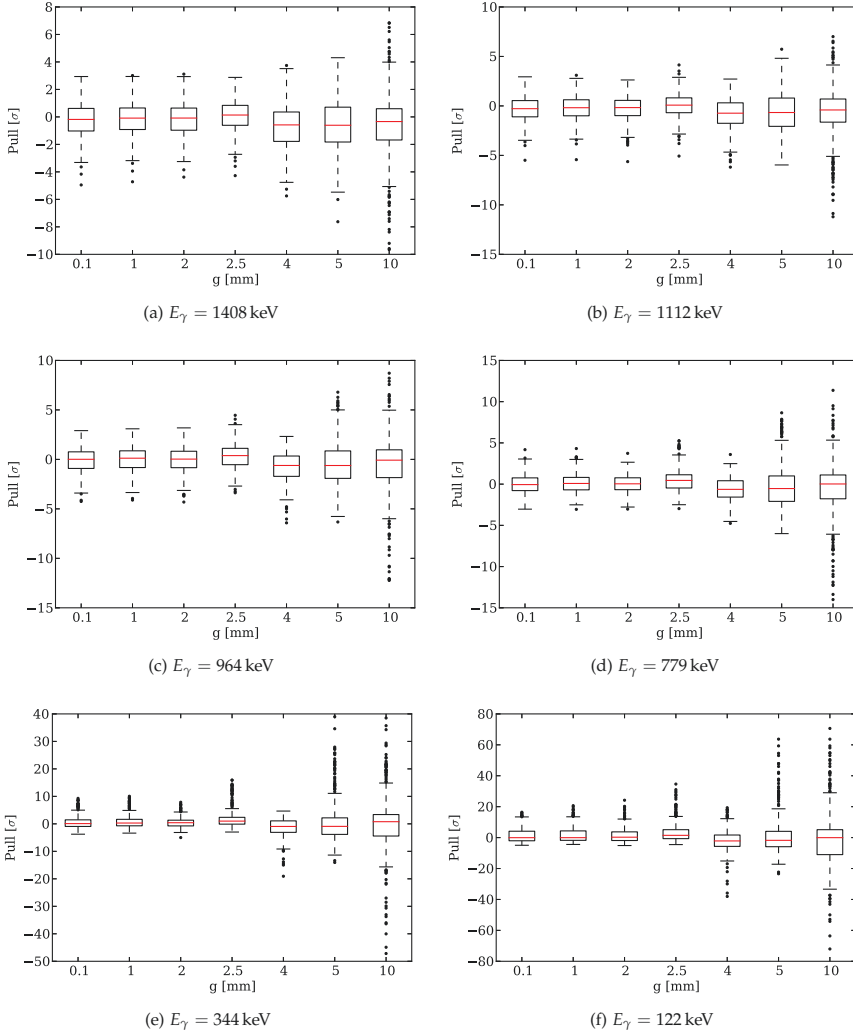
Abbildung 7.16: Vergleich zwischen simulierten (Symbole) mit den aus SGSreco (Linien) numerisch und analytisch berechneten Effizienzfeldern für eine ¹⁵²Eu-Punktquelle unter Berücksichtigung der Absorption in allen Matrixabschnitten. ($E_\gamma = 779$ keV)

schen γ -Linien konnten in den simulierten γ -Spektren nicht identifiziert werden, da sie in den Matrixabschnitten komplett absorbiert wurden. Aus diesen Abbildungen lassen sich grundsätzlich dieselben systematischen Abweichungen feststellen, wie bereits im ersten Schritt der Validierung. Somit kann festgehalten werden, dass das Absorptionsverhalten in den Matrixabschnitten nicht zu weiteren Ungenauigkeiten in den Berechnungen durch SGSreco führt.

E_γ [keV]	Ohne Fass		Mit Fass	
	μ	σ	μ	σ
1408	-0,15	1.08	-0.07	0.97
1112	-0,14	1.04	-0.36	0.91
964	-0.02	1.10	-0.37	1.12
779	+0.01	1.12	-0.44	1.02
344	+0.01	1.50	-	-
122	-0.76	2.97	-	-

Tabelle 7.2: Parameter der Pullverteilungen aus den Abweichungen zwischen den numerisch berechneten und simulierten Effizienzfeldern. μ ist der Mittelwert und σ die Standardabweichung der Verteilung.

IM DRITTEN SCHRITT DER VALIDIERUNG werden die Abweichungen zwischen der numerischen Berechnung und den simulierten Daten anhand ihrer Pullverteilungen verglichen, um die statistische Signifikanz der Abweichungen zu quantifizieren. Dieselbe Studie zwischen den analytisch berechneten und den simulierten Daten ist hinfällig, da bereits im ersten und zweiten Schritt der Validierung gezeigt wurde, dass zum Teil deutliche systematische Abweichungen zwischen den Datensätzen zu erkennen sind. Die berechneten Pullverteilungen wurden durch eine Normalverteilung angepasst, deren Parameter in Tabelle 7.2 zusammengefasst sind. Anhand dieser Daten lässt sich die bereits optisch festgestellte gute Übereinstimmung der numerisch berechneten Werte mit den simulierten Daten quantifizieren. Die Standardabweichung der Normalverteilung ist in allen Fällen, außer bei den bereits erwähnten beiden niederenergetischen γ -Linien, gut mit eins und die Mittelwerte in guter Näherung mit null verträglich. Das zeigt, dass die leichten systematischen Abweichungen, wie in den ersten beiden Schritten der Validierung gezeigt, die statistische Schwankungsbreite nicht überschreiten. Für die γ -Linie bei 122 keV machen sich jedoch die teilweise signifikanten systematischen Abweichungen bemerkbar und die Parameter der Normalverteilung lassen darauf schließen, dass die Abweichungen nicht mehr in der statistischen Schwankungsbreite untergehen. In den Fällen, in denen ein Abfallfass berücksichtigt wurde, lassen sich die Aussagen grundsätzlich wiederholen, auch wenn die Mittelwerte der Normalverteilung auf eine leichte systematische Unterschätzung hinweisen. Grundsätzlich muss allerdings festgehalten werden, dass der größte Informationsgehalt



über die Position der Punktquelle, gerade in den Bereichen liegt, in denen die Punktquelle den Detektor gut ausleuchtet. In diesen Bereichen zeigen beide Modelle eine gute Übereinstimmung. Der große Vorteil der analytischen Berechnung im Gegensatz zur numerischen Berechnung liegt in der deutlich schnelleren Rechenzeit, wie es in den folgenden Kapiteln gezeigt wird.

7.3.5 Gittergröße für die numerische Berechnung des effektiven Raumwinkels

FÜR DIE NUMERISCHE BERECHNUNG der Zählratenverteilung ist die Anzahl der Stützstellen für die numerische Integration und damit

Abbildung 7.17: Box-Whisker-Diagramme für die Pullverteilungen bei verschiedenen Gittergrößen und Energien für den Vergleich von simulierten Daten und den numerischen Berechnungen aus SGSreco. Die rote Linie ist der Median. Die Box zeigt den Abstand zwischen dem 0,25- und dem 0,75-Perzentil. Die Länge der Whiskers bezieht sich auf den 1,5-fachen Interquartilsabstand. Die Punkte zeigen die Ausreißer.

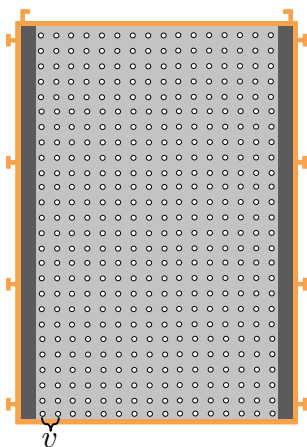


Abbildung 7.18: Schematische Zeichnung der Diskretisierung einer homogenen Radionuklidverteilung durch dicht beieinander verteilte Punktquellen.

⁹¹ T. Krings u. a. "A numerical method to improve the reconstruction of the activity content in homogeneous radioactive waste drums". In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A* 701 (Feb. 2013), S. 262–267.

die Gittergröße g von zentraler Bedeutung. Um die optimale Gittergröße zu bestimmen, werden die numerischen Berechnungen für die Gittergrößen 10 mm, 5 mm, 4 mm, 2,5 mm, 2 mm, 1 mm und 0,1 mm mit den simulierten Daten aus der Modelvalidierung ohne Berücksichtigung des Abfallfasses verglichen. Ist die optimale Gittergröße erreicht, so sind keine wesentlichen Veränderungen der Breite der Pullverteilung bei kleineren Gittergröße zu erwarten. Das Optimum bezieht sich hierbei auf die Genauigkeit im Vergleich zur Rechenzeit. Eine kleinere Gittergröße benötigt bei wachsender Genauigkeit auch immer mehr Rechenzeit. Um die optimale Gittergröße zu bestimmen, wurden die Pullverteilungen für jede Energie und jede Gittergröße zu Box-Whisker-Diagrammen verarbeitet, wie in Abbildung 7.17 für alle berücksichtigten γ -Linien von ^{152}Eu gezeigt. Es lässt sich leicht erkennen, dass sich die Pullverteilungen aller γ -Linien ab einer Gittergröße von 2 mm kaum ändern. Die Gittergröße von 2 mm wird daher als Optimum angesehen und in den folgenden Berechnungen durch das numerische Modell als Standard benutzt.

7.4 Aktivitätsberechnung bei homogenen Radionuklidinventaren

DIE AKTIVITÄTSBESTIMMUNG von einem homogenen Radionuklidinventar kann durch die konventionelle Methode, wie sie Abschnitt 4.4 vorgestellt wurde, durchgeführt werden. Grundsätzlich basiert diese Methode auf der Integration der Gleichung (4.6) über das gesamte Volumen eines Fassabschnitts beziehungsweise des ganzen Abfallfasses. In der konventionellen Methode wurde die Integration durch mehrere Näherungen in Bezug auf die Kollimation und das Absorptionsverhalten im Abfallfass analytisch gelöst. Dieses Verfahren bietet eine Genauigkeit von circa 30 %. Um diese Näherungen zu vermeiden, kann die Integration auch numerisch auf der Grundlage von Gleichung (7.8) durchgeführt werden.⁹¹ Dazu wird der Fassabschnitt beziehungsweise das Abfallfass in n_V kubische Voxel mit gleicher Seitenlänge

$$v = \Delta x = \Delta y = \Delta z \quad (7.58)$$

eingeteilt. Im Zentrum eines Voxels wird, wie in Abbildung 7.18 dargestellt, eine Punktquelle angenommen. Der Abstand zwischen den Punktquellen entspricht der Gittergröße v . Tatsächlich wird eine homogene Aktivitätsverteilung in dieser numerischen Berechnung durch eine Ansammlung von dicht beieinander verteilten Punktquellen diskretisiert.

DIE EFFIZIENZ $\tilde{\epsilon}(E_\gamma, \vec{r})$ für die Detektion einer Punktquelle im Zentrum eines Voxels kann gemäß Gleichung (7.4) und den zugehörigen numerischen und analytischen Methoden berechnet werden. Die Effizienz ϵ_{hom} gegenüber einer homogenen Radionuklidverteilung setzt sich aus den anteiligen Effizienzen $\tilde{\epsilon}_i$, die von der Punktquelle im

Zentrum des i ten Voxels am Ort $\vec{r}_{V,i}$ erzeugt wird, zusammen und kann durch

$$\epsilon_{hom}(E_\gamma) = \sum_{i=1}^{n_V} \tilde{\epsilon}(E_\gamma, \vec{r}_{V,i}). \quad (7.59)$$

berechnet werden. Die Aktivität eines homogenen Radionuklidinventars \mathcal{A} kann somit durch die mittlere gemessene Zählrate \bar{Z} zu

$$\mathcal{A} = \frac{n_V \cdot \bar{Z}(E_\gamma)}{\epsilon_{hom}(E_\gamma) \cdot p(E_\gamma)}. \quad (7.60)$$

bestimmt werden. Statistische Unsicherheiten resultieren aus der Unsicherheit der mittleren Zählrate \bar{Z} sowie der Detektionseffizienzen und können zu

$$\sigma_{\mathcal{A}} = \sqrt{\left(\frac{\mathcal{A}}{\epsilon(E_\gamma, x_0)} \sigma_{\epsilon_0} \right)^2 + \left(\frac{\mathcal{A}}{\bar{Z}} \sigma_{\bar{Z}} \right)^2}. \quad (7.61)$$

bestimmt werden. Unsicherheiten, die aus der Diskretisierung des Problems in Voxel folgen, können vernachlässigt werden, wenn die Größe der Voxel klein genug ist. Die optimale Voxelgröße wird in Kapitel 8 bestimmt. Bei Radionukliden mit $n_\gamma > 1$ charakteristischen γ -Linien wird die Aktivität aus dem gewichteten Mittelwert

$$\mathcal{A}_{hom} = \frac{\sum_{i=0}^{n_\gamma} \left(\frac{\mathcal{A}_i}{\sigma_{\mathcal{A},i}} \right)^2}{\left(\sum_{i=0}^{n_\gamma} \frac{1}{\sigma_{\mathcal{A},i}^2} \right)^2} \quad (7.62)$$

der einzelnen Aktivitäten nach Gleichung (7.60) berechnet. Die gesamte statistische Unsicherheit ergibt sich dann zu

$$\sigma_{\mathcal{A}_{hom}} = \sqrt{\frac{1}{\sum_{i=0}^{n_\gamma} \frac{1}{\sigma_{\mathcal{A},i}^2}}}. \quad (7.63)$$

7.5 Rekonstruktionsalgorithmus

DIE AKTIVITÄTSREKONSTRUKTION IN SGSRECO wird durch die Klasse `SGSAnalyzer` gesteuert und folgt dem in Abbildung 7.19 gezeigten Flowsheet. Die Klasse `SGSAnalyzer` erhält die Datengrundlage aus den Input- und Datenbank-Klassen. Eine besondere Wichtigkeit kommt hierbei der Klasse `SGSscanData` zu. Sie liefert die essenziellen Ergebnisse der First-Guess Rekonstruktion bezüglich der Identifizierung von Punktquellen. Wurden in der First-Guess Rekonstruktion keine Punktquellen identifiziert, so wird die Aktivität anhand der mittleren Zählrate \bar{T} gemäß Abschnitt 7.4 durch die Klasse `SGShomAct` bestimmt. Wurden n_Q Punktquellen identifiziert, folgt ein zweistufiges Rekonstruktionsverfahren. Der Satz von Rekonstruktionsparametern kann dabei aus der folgenden Auflistung festgelegt werden:

Matrixparameter: Je Fassabschnitt

- d_A : Dicke des Abschirmbehälters
- d_P : Dicke der passiven Matrix
- ρ_M : Dichte der aktiven Matrix

Parameter für eine homogene Radionuklidverteilung: Je Radionuklid und Fassabschnitt

- \bar{T} : Mittlere homogene Zählrate

Punktquellenparameter: Je Punktquelle

- (r_Q, φ_Q, z_Q) : Position
- A : Aktivität

Matrixparameter können nur berücksichtigt werden, wenn das zu analysierende Radionuklid über mehr als eine charakteristische γ -Linie verfügt, da nur die unterschiedliche Absorption beider γ -Linien in der Abfallmatrix Rückschlüsse auf die Matrixparameter erlaubt. Da grundsätzlich nicht zwischen der Absorption im Abschirmbehälter, in der passiven sowie in der aktiven Matrix unterschieden werden kann und gleichzeitige Variationen der Parameter zu identischen Zählratenverteilungen führen können, kann nur einer dieser Parameter in der Rekonstruktion bestimmt werden. Sind die Matrixparameter vorab bekannt, wird als freier Parameter für eine homogene Radionuklidverteilung auch bei Radionukliden mit mehreren γ -Linien nur die Referenzzählrate $\bar{T}(E_{\gamma,ref})$ benötigt, da alle anderen Zählraten $\bar{T}(E_{\gamma})$ mit der Referenzzählrate korreliert sind. Die Korrelationen werden im Vorhinein durch das Verhältnis der Referenzeffizienz $\epsilon_{hom}(E_{\gamma,ref})$ zu der Effizienz $\epsilon_{hom}(E_{\gamma})$ gemäß Gleichung (7.60) in der Klasse SGShomAct berechnet. Sind in einem Fassabschnitt über 50 % der Zählraten bei 0, obwohl Punktquellen identifiziert worden sind, wird automatisch angenommen, dass keine zusätzliche homogene Radionuklidverteilung vorliegt.

IN DER ERSTEN REKONSTRUKTIONSSSTUFE wird eine χ^2 -Anpassung durchgeführt. Das χ^2 ist durch

$$\chi^2 = \sum_{k=0}^{n_{\gamma}} \sum_{i=0}^{n_{seg}} \sum_{j=0}^{n_{seg}} \left(\frac{Z_{ij}(E_{\gamma,k}) - T_{ij}(E_{\gamma,k})}{\sigma_{Z_{ij}}} \right)^2 \quad (7.64)$$

definiert und berücksichtigt alle Matrixelemente Z_{ij} und T_{ij} , die zu einem Fassabschnitt zugeordnet werden. Zusätzlich werden die Zählratenverteilungen aller identifizierten charakteristischen γ -Linien gleichzeitig analysiert, da sie zwangsläufig zur selben Verteilung gehören. In SGSreco ist das χ^2 in der Klasse SGSchi2 implementiert. Das Optimum der Übereinstimmung zwischen den Zählratenverteilungen \underline{T} und \underline{Z} lässt sich durch die Minimierung des χ^2 bestimmen. Die Rekonstruktionsparameter, die das χ^2 minimieren, werden anschließend als wahr angenommen. Die Minimierung wird durch das MINUIT2

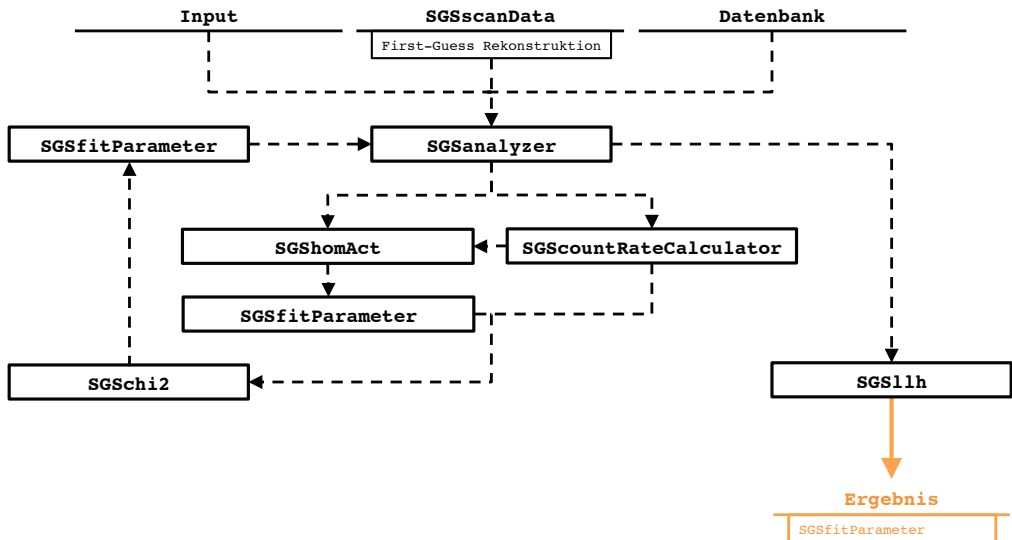
Minimization Package durchgeführt, welches im ROOT-Framework für Datenanalyse integriert ist. MINUIT2 beziehungsweise ROOT ist eine in C++ geschriebene Klassensammlung, die direkt in SGSreco implementiert werden kann.⁹² Die χ^2 -Anpassung dient der Bestimmung von optimalen Startwerten der Punktquellenparameter als Basis für die zweite Rekonstruktionsstufe. Für die χ^2 -Anpassung werden Matrixparameter auf ihre Erwartungswerte⁹³ und die Referenzzählrate $T(E_{\gamma,ref})$ auf 0 gesetzt und während der Minimierung nicht rekonstruiert. Die Anzahl der Punktquellen n_Q sowie die Startwerte für φ_Q und z_Q werden aus der First-Guess Rekonstruktion übernommen. Zur Bestimmung des Startwertes für die Aktivität der Punktquellen, wird die Aktivität im Fassabschnitt unter der Annahme einer homogenen Radionuklidverteilung bestimmt und das Ergebnis als Aktivitätsstartwert für jede einzelne Punktquelle übernommen. Aufgrund der Unkenntnis des Startwertes für r_Q und der Vermeidung der Rekonstruktion von falschen Minima, wird die χ^2 -Anpassung iterativ durchgeführt. Bei jeder Iteration wird ein anderer Startwert für r_Q gemäß einer Gleichverteilung zufällig bestimmt. Die Parameter der Punktquellen im besten Minimum aus einer der Iterationen werden anschließend als Startwerte für die zweite Stufe der Rekonstruktion benutzt. Die Anzahl der nötigen Iteration hängt von der Anzahl der Punktquellen ab und wird in Kapitel 9 näher untersucht.

⁹² Brun und Rademakers, s. Anm. 69; F. James und M. Winkler. *MINUIT User's Guide*. Techn. Ber. Genf: CERN, 2004.

⁹³ siehe Abschnitt 7.2

IN DER ZWEITEN REKONSTRUKTIONSSTUFE werden nun alle gewählten Parameter als frei betrachtet und es wird mit den Startwerten aus der iterativen χ^2 -Anpassung eine Log-Likelihood-Anpassung

Abbildung 7.19: Ablaufdiagramm für die Rekonstruktion der Radionuklidverteilung und ihrer Gesamtaktivität in einem Abfallfass durch SGSreco.



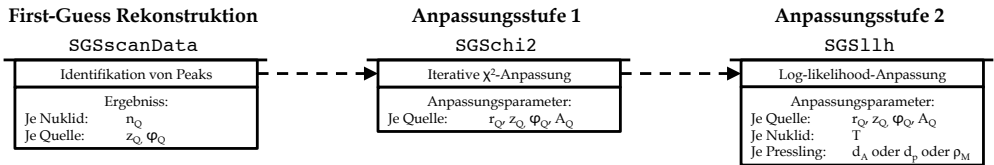
durchgeführt. Die Log-Likelihood-Funktion ist durch

$$\log(\mathcal{L}) = \sum_{k=0}^{n_\gamma} \sum_{i=0}^{n_{seg}} \sum_{j=0}^{n_{seg}} \log(p(Z_{ij}(E_{\gamma,k})|T_{ij}(E_{\gamma,k}))) \quad (7.65)$$

definiert und basiert auf der Poisson-Wahrscheinlichkeit $p(Z_{ij}(E_{\gamma,k})|T_{ij}(E_{\gamma,k}))$, dass bei einer zu erwartenden Zählrate T_{ij} eine Zählrate Z_{ij} gemessen wird. Auch hier werden analog zur χ^2 -Anpassung mit denselben Code-Frameworks die Parameter gesucht, die $-\log(\mathcal{L})$ minimieren. Der Vorteil einer $\log(\mathcal{L})$ -Anpassung im Gegensatz zu einer χ^2 -Anpassung liegt in der korrekten Gewichtung des Einflusses von niedrigen Zählraten auf die Anpassung. Bei der χ^2 -Anpassung werden normalverteilte Vergleichsgrößen vorausgesetzt. Gerade bei niedrigen Zählraten trifft dies nicht zu, sodass die Unsicherheiten und somit die Gewichtungen im Rahmen der Poisson-Statistik berücksichtigt werden müssen. Der große Vorteil der χ^2 -Anpassung liegt allerdings in der schnellen Berechnungszeit und in der Vermeidung von numerischen Problemen bei weit entfernten Startparametern. Wenn die Startparameter weit von den Referenzparametern entfernt sind, kommt es häufig vor, dass \mathcal{L} aufgrund der Präzision der Maschinenberechnung exakt 0 ist und somit $\log(\mathcal{L})$ singulär wird. Der Minimierungsalgorithmus in MINUIT2 kann daher nicht entscheiden, wie er die Parameter zu variieren hat, um das Minimum zu finden. Bei der χ^2 -Anpassung treten diese numerischen Probleme nicht auf. Die χ^2 -Anpassung hat deshalb die Aufgabe, diejenigen Startparameter für die $\log(\mathcal{L})$ -Anpassung zu finden, die nahe genug an den Referenzparameter dran sind, um Singularitäten in der Berechnung von $\log(\mathcal{L})$ zu vermeiden. In Abbildung 7.20 ist der Ablauf des mehrstufigen Rekonstruktionsalgorithmus in SGRSreco zusammengefasst.

IN SGRSRECO werden die einzelnen Fassabschnitte unabhängig von einander analysiert. Trotzdem sind aber gerade bei den Segmenten an den Übergängen einzelner Fassabschnitt Cross-Talk-Effekte zu beobachten. So erzeugen Quellen auch aus benachbarten Fassabschnitten Zählraten bei Sektormessung an einem anderen Fassabschnitt. Um diesem Effekt Rechnung zu tragen, wird in allen Grenzsegmenten analysiert, ob Cross-Talk von Punktquellen aus den benachbarten Fassabschnitten zu erkennen ist. Ist das der Fall, so wird bei der Rekonstruktion der Aktivitäten im zu analysierenden Fassabschnitt

Abbildung 7.20: Rekonstruktionsstufen in SGRSreco mit den jeweilig möglichen Rekonstruktionsparametern einer Stufe.



χ^2		$\log(\mathcal{L})$			
		S	M	P	I
(r_Q, φ_Q, z_Q)	+	+	+	+	+
A	+	+	+	+	+
\bar{T}	-	+	+	+	-
d_A	-	-	-	-	+
d_P	-	-	-	+	-
ρ_M	-	-	+	-	-
n_{par}	$4n_Q$	$4n_Q + 1$	$4n_Q + 2$	$4n_Q + 2$	$4n_Q + 2$

Tabelle 7.3: Zusammenstellung der unterschiedlichen vorab definierten Rekonstruktionsmodi in SGSreco. Der Modus S ist der Standardmodus, M ist der Matrixmodus, P ist Absorbermodus und I ist der Modus für industrielle Abfälle. Der Parameter n_Q steht für die Anzahl der identifizierten Punktquellen und n_{par} ist die Anzahl der Anpassungsparameter in den jeweiligen Anpassungsmodi.

eine weitere hypothetische Punktquelle berücksichtigt. Diese hypothetische Quelle hilft dem Anpassungsalgorithmus auch die Zählratenverteilungen an den Grenzsegmenten der Fassabschnitte optimal zu rekonstruieren. Die Parameter dieser Quelle werden bei der späteren Bilanzierung der Gesamtaktivität nicht berücksichtigt.

DIE EINZELNEN PARAMETERSETS für die verschiedenen in SGSreco vordefinierten Rekonstruktionsmodi sind in Tabelle 7.3 zusammengefasst. Der Standardmodus ist für Abfallfässer mit mehreren unabhängigen Fassabschnitten optimiert. Die Matrix- und Absorbermodi sind hinsichtlich unbekannter Matrixdichten oder Dicken der passiven Matrix optimiert, wie sie beispielsweise bei zementierten Abfällen auftreten können. Der Rekonstruktionsmodus für industrielle Abfälle berücksichtigt auch die mögliche Verpackung von Punktquellen in Abschirmbehältern.

7.6 Statistische und systematische Unsicherheiten

STATISTISCHE UNSICHERHEITEN von einzelnen Rekonstruktionsparametern werden mit dem MINOS-Paket in MINUIT2 berechnet. MINOS bestimmt die statistischen Unsicherheiten durch die Untersuchung von $-\log(\mathcal{L})$ in der Umgebung des Minimums bei einer Variation der jeweiligen Parameter. Zur Unsicherheitsbestimmung mit MINOS werden Parameterkorrelationen und Asymmetrien in der Umgebung des $-\log(\mathcal{L})$ -Minimums berücksichtigt.⁹⁴ Gleichzeitig werden auch die statistischen Unsicherheiten der ermittelten Zählraten bei jeder analysierten Sektormessung berücksichtigt.

⁹⁴ James und Winkler, s. Anm. 92; F. James. *The Interpretation of Errors in MINUIT*. Techn. Ber. Genf: CERN, 2004.

SYSTEMATISCHE UNSICHERHEITEN ergeben sich aus zwei unterschiedlichen Quellen. Diese sind die intrinsischen Modelungenauigkeiten⁹⁵ und die Unsicherheiten der Effizienzkalibration⁹⁶. Systematische Unsicherheiten aufgrund von Ungenauigkeiten in den Modellen zur Zählratenberechnung führen zu systematischen Fehlbestimmung aller Rekonstruktionsparameter. Sie beeinflussen daher maßgeblich die Genauigkeit der Rekonstruktion, wie in Kapitel 9 näher untersucht. Für eine Rekonstruktion können diese Unsicherheiten aufgrund der Abhängigkeit von einer Vielzahl an Parametern, wie zum Beispiel

⁹⁵ siehe Abschnitt 7.3.4

⁹⁶ siehe Abschnitt 6.3

von der Quellposition oder der Matrixdichte, nicht berücksichtigt werden. Anders verhält es sich bei den Unsicherheiten aus der Effizienzkalibration. Diese Unsicherheiten wirken sich als systematische Unsicherheiten im Rahmen der Rekonstruktion allerdings lediglich auf die Aktivitäten und nicht auf die Positionen der Punktquellen aus. Dieser Effekt ist darin begründet, dass der Term $\epsilon(E_\gamma, d_0) \cdot A$ nach Gleichung (7.4) lediglich die Normierung der Zählratenverteilung darstellt und somit an allen Sektoren für eine Punktquelle gleich ist. Information über die Peakform wird durch die Gleichungen (7.9) und (7.10) erzeugt, welche unabhängig von der Effizienz sind. Im Falle eines Radionuklids, das nur über eine einzige charakteristische γ -Linie verfügt, können die systematischen Abweichungen analytisch berechnet werden. Demnach muss gefordert werden, dass das Produkt aus Effizienz und Aktivität auch bei einer Variation um die Unsicherheiten der Effizienz stets dem Produkt aus Effizienz und Aktivität nach der Referenzrekonstruktion entspricht. Es gilt:

$$(\epsilon(E_\gamma, d_0) \mp \sigma_\epsilon) \cdot (A + \sigma_{A\pm}) = \epsilon(E_\gamma, d_0) \cdot A. \quad (7.66)$$

Aus dieser Annahme lässt sich die relative systematische Unsicherheit zu

$$\frac{\sigma_{A\pm}}{A} = \frac{\pm \frac{\sigma_\epsilon}{\epsilon(E_\gamma, d_0)}}{\left(1 \mp \frac{\sigma_\epsilon}{\epsilon(E_\gamma, d_0)}\right)} \quad (7.67)$$

bestimmen. Die relativen systematischen Unsicherheiten sind aus diesem Grund nicht symmetrisch. Ist die Effizienz beispielsweise systematisch um 5 % unter- oder überschätzt, so ist die Aktivität der Quelle um 5,26 % über- beziehungsweise um 4,76 % unterschätzt. Verfügt ein Radionuklid über mehrere charakteristische γ -Linien, ist dieser Ansatz nur dann korrekt, wenn die Unsicherheiten der Effizienz bei jeder dieser Linien gleich sind. Ist dies nicht der Fall, ist die Berechnung auf diesem Weg nicht möglich. Bei festgelegten Positionsparametern aus der Referenzrekonstruktion muss die Aktivität der Quelle bei einer veränderten Effizienz einmal mit $\epsilon(E_\gamma, d_0) + \sigma_\epsilon$ und ein weiteres mal mit $\epsilon(E_\gamma, d_0) - \sigma_\epsilon$ neu rekonstruiert werden. Aus den Abweichungen der erneut rekonstruierten Aktivitäten zur Referenzaktivität, kann die systematische Unsicherheit bestimmt werden.

7.7 Nachweisgrenzen - Maximal nicht-detektierbare Aktivitäten

DIE NACHWEISGRENZE gibt die Minimalaktivität eines Radionuklids an, die ausreicht, damit es im gemessenen γ -Spektrum der Probe nachgewiesen werden kann. Im einfachsten Fall wird eine instrumentelle Nachweisgrenze eines Messsystems bezüglich verschiedener Radionuklide auf den Untergrund durch die natürliche Radioaktivität der Umgebung bezogen.⁹⁷ Bei der Charakterisierung von großvolumigen Proben hängen die Nachweisgrenzen zusätzlich stark von der Selbstabsorption der γ -Strahlung in der Probe ab. Für die Berechnung von

⁹⁷ DIN 32645:2008-11. *Chemische Analytik - Nachweis-, Erfassungs- und Bestimmungsgrenze unter Wiederholbedingungen - Begriffe, Verfahren, Auswertung.*

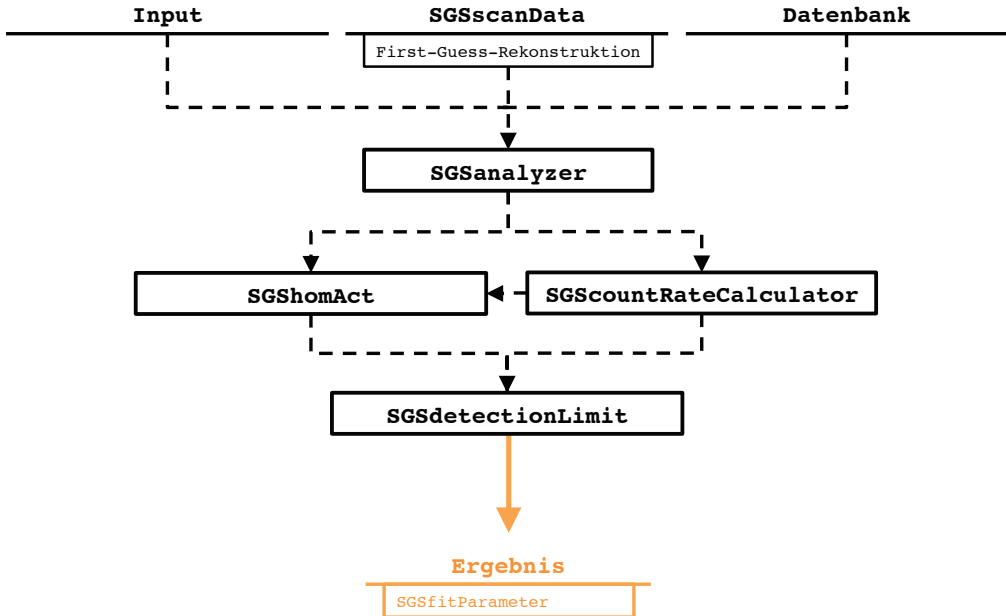


Abbildung 7.21: Ablaufdiagramm für die Bestimmung von Maximal nicht-detectierbaren Aktivitäten in einem Abfallfass durch SGSreco.

Nachweisgrenzen müssen somit die Probengeometrie, die Verteilung des Radionuklids in der Probe und die Energien der charakteristischen γ -Linien des Radionuklids berücksichtigt werden. Da die Nachweisgrenze auf der Basis des Untergrundspektrums berechnet wird, hängt sie darüber hinaus von dem nachweisbaren Radionuklidinventar der Probe und von der Messzeit ab. Grundsätzlich erwartet man, dass ein Peak bei der Energie E_γ in einem Spektrum immer dann nachweisbar ist, wenn er mindestens mit einer Signifikanz von 3σ über der Untergrundzählrate $U(E_\gamma)$ zu erkennen ist. Auf Basis der Poissonstatistik muss die minimale Zählrate $Z_{min}(E_\gamma)$ im Peak daher mindestens

$$Z_{min}(E_\gamma) = 3 \cdot \sqrt{U(E_\gamma)} \quad (7.68)$$

betragen. Das Ziel bei der Berechnung von Nachweisgrenzen in SGSreco, ist die Abschätzung einer maximal nicht-detectierbaren Aktivität (MNDA) eines Radionuklids in einem Abfallfass. Die Bestimmung von MNDAs verschiedener Radionuklide ist im Rahmen von SGS-Messungen in zweierlei Hinsichten wichtig. Zum einen kann dadurch gezeigt werden, dass die MNDAs unter den jeweiligen Deklarationsschwellenwerten für das Endlager Konrad liegen und somit nicht deklarationspflichtig sind⁹⁸. Zum anderen können durch die MNDAs Konsistenztests mit den Berechnung der jeweiligen radionuklidspezifischen Aktivitäten aus Skalierungsverfahren durchgeführt werden⁹⁹.

⁹⁸ siehe Abschnitt 2.2

⁹⁹ siehe Abschnitt 3.6

DIE BESTIMMUNG von maximalen nicht-detektierbaren Aktivitäten in SGSreco ist aufgrund der Vielzahl an vorhandenen γ -Spektren sehr komplex und es müssen zwei unterschiedliche Fälle betrachtet werden. Es muss berücksichtigt werden, dass die nicht identifizierten Radionuklide entweder homogen in der aktiven Matrix verteilt sind oder als Punktquellen vorliegen. Liegt das nicht identifizierte Radionuklid in Form einer Punktquelle vor, so ist die maximal nicht-detektierbare Aktivität nicht eindeutig bestimmbar, da die Punktquelle grundsätzlich an jeder beliebigen Position im Abfallfass sein kann. Jede dieser Positionen würde zu einer anderen Detektionswahrscheinlichkeit und somit auch zu einer anderen MNDA führen. Zusätzlich könnten sich mehrere Punktquellen von diesem Radionuklid im Abfallfass befinden, die jeweils unabhängig von einander detektiert werden. SGSreco bietet für diesen Fall daher nur eine Abschätzung der MNDA. Als konservative Abschätzung wird angenommen, dass die Punktquelle im Fasszentrum lokalisiert ist und somit maximal durch die Abfallmatrix abgeschirmt wird. In jeder Sektormessung eines Segments wird deshalb grundsätzlich dieselbe mittlere Zählrate $\bar{Z}(E_\gamma)$ dieses Radionuklids erwartet. Aus allen Sektorspektren, die mit einem Segment eines Fassabschnitts assoziiert sind, wird jenes Sektorspektrum als Referenzsektorspektrum ausgewählt, das den geringsten Untergrund im Bereich der charakteristischen γ -Linien des nicht identifizierten Radionuklids hat. Es wird dann angenommen, dass die Punktquelle im Zentrum dieses Segments positioniert ist. Anschließend wird das Summenspektrum aller Sektorspektren gebildet, die in diesem Segment im Rahmen ihrer statistischen Unsicherheiten eine im Bereich von 1σ vergleichbare Untergrundzählrate $U(E_\gamma)$, wie das Referenzsektorspektrum, haben. Die MNDAs für Punktquellen werden dann auf der Basis von diesem Summenspektrum bestimmt. Es wird somit vermieden, dass die MNDAs aufgrund von Sektormessungen mit sehr hohen Untergrundzählraten für die nicht identifizierten Radionuklide zu konservativ abgeschätzt werden. Auf der Basis der Untergrundzählrate $\bar{U}(E_\gamma)$ in diesem Summenspektrum kann die mittlere minimale Zählrate $\bar{Z}_{min}(E_\gamma)$, die zu einer Identifizierung des Radionuklids im Summenspektrum führen würde, zu

$$\bar{Z}_{min}(E_\gamma) = 3 \cdot \sqrt{\bar{U}(E_\gamma)} \quad (7.69)$$

bestimmt werden. Gemäß Abschnitt 7.3 kann nun durch die Klasse `SGScountrateCalculator` die Aktivität der Punktquelle berechnet werden, die nötig ist, um die Zählrate $\bar{Z}_{min}(E_\gamma)$ in diesem Summenspektrum zu generieren. Das wird für jedes Segment in einem Fassabschnitt wiederholt. Die größte der so berechneten Aktivitäten wird als maximal nicht-detektierbare Aktivität angegeben. Die Vorgehensweise zur Bestimmung der MNDA einer homogenen Radionuklidverteilung ist nahezu identisch. Das Summenspektrum wird dabei allerdings nicht nur aus den ausgewählten Sektorspektren eines Segments gebildet, sondern aus denen aller Segmente des Fassabschnitts. Die zugehörige Aktivität der nicht-detektierbaren homogenen Radionuklidverteilung kann dann analog zu Gleichung 7.60 durch die Klasse

SGShomAct bestimmt werden.

DIE IMPLEMENTATION der Berechnung von radionuklidspezifischen MNDAS wird in SGSreco durch die Klasse SGSDetectionLimit realisiert. In Abbildung 7.21 ist der Verlauf für die Bestimmung von MNDAS in SGSreco zusammengefasst. Die Klasse SGSScanData enthält in diesem Fall nicht mehr die Zählratenverteilungen, sondern die Untergrundverteilungen für das nicht identifizierte Radionuklid, für das die MNDA bestimmt werden soll.

8

Rekonstruktion homogener Radionuklidinventare

INHALT:

8.1	Parameter- und Benchmarkstudie anhand von Simulationen	102
8.1.1	<i>Simulationssets</i>	102
8.1.2	<i>Integrationsgrenzen</i>	103
8.1.3	<i>Optimale Gittergröße und Rechenzeit</i>	105
8.1.4	<i>Benchmarkstudie</i>	108
8.2	Validierung anhand eines konditionierten Referenzfasses	108

8.1 Parameter- und Benchmarkstudie anhand von Simulationen

DIE REKONSTRUKTION von radionuklidspezifischen Aktivitäten auf der Grundlage einer homogenen Radionuklidverteilung in SGSreco bedarf der grundsätzlichen Analyse verschiedener Parameter, die der numerischen Integration gemäß Abschnitt 7.4 zu Grunde liegen. Dies sind die Integrationsgrenzen in Bezug auf die Höhe eines Abfallfasses und die Gittergröße v . Die Auswirkungen dieser Parameter auf die Genauigkeit der radionuklidspezifischen Aktivitätsrekonstruktion und auf die benötigten Rechenzeiten werden anhand einer Simulationsstudie untersucht. Die durch SGSreco erreichte Genauigkeit in der radionuklidspezifischen Aktivitätsrekonstruktion auf der Grundlage der optimalen Integrationsparameter wird anschließend mit der Genauigkeit durch die konventionellen Methoden nach Abschnitt 4.4 in einer Benchmarkstudie verglichen.

GRUNDSÄTZLICH kann die Aktivitätsrekonstruktion auch mit anderen als den hier als optimal beschriebenen Parametern durchgeführt werden. Zum Beispiel kann durch eine deutlich längere Rechenzeit eine höhere Genauigkeit erkaufte werden, oder es kann durch eine kürzere Rechenzeit auf Genauigkeit verzichtet werden. Die Einstellung dieser Parameter wird letztendlich durch den Anwender auf die jeweiligen Rahmenbedingungen der SGS-Messungen eingestellt. Die Rahmenbedingungen folgen dabei beispielsweise aus dem Ablaufplan für ein qualifiziertes Konditionierungsverfahren, oder aus den Anforderungen der Gutachter sowie dem Abfallaufkommen. Über einen Teil der Ergebnisse dieser Studie wurde bereits in einer Publikation berichtet.¹⁰⁰

¹⁰⁰ Krings u. a., s. Anm. 91.

8.1.1 Simulationssets

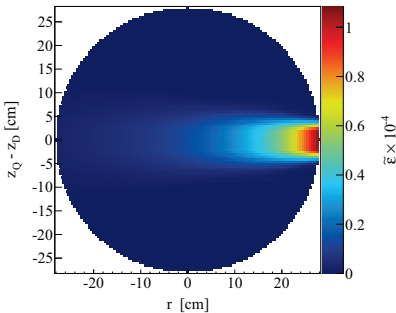
ALS GRUNDLAGE FÜR DIE SIMULATIONSSTUDIE wird die im Abschnitt 6.5 vorgestellte Analyse der im Forschungszentrum Jülich γ -spektrometrisch vermessenen konditionierten Abfallfässer genutzt. In dieser Analyse konnte gezeigt werden, dass die Matrixdichten einzelner Presslinge in einem Bereich von $0,5 \text{ g cm}^{-3}$ bis $2,3 \text{ g cm}^{-3}$ liegen und, dass die Radionuklidinventare in den Abfallfässern hauptsächlich aus den Schlüsselnukliden ^{60}Co und ^{137}Cs bestehen. Der Matrixdichtebereich von $0,5 \text{ g cm}^{-3}$ bis $2,3 \text{ g cm}^{-3}$ gilt daher als Grundlage für die Auswahl der Matrixmaterialien in der Simulationsstudie und damit für die Analyse des systematischen Einflusses der Matrixdichte auf die Aktivitätsrekonstruktion. Durch die Materialzusammensetzung der Matrix sind im Gegensatz zur Matrixdichte keine systematischen Einflüsse auf die Aktivitätsrekonstruktion zu erwarten. Jedoch wurde darauf Wert gelegt, dass für die Matrixdichten repräsentative Materialien ausgewählt wurden. Für Abfallfässer mit einer

niedrigen Dichte wurde PE mit der entsprechenden Beimischung aus Luft als Matrixmaterial ausgewählt. Die Dichte dieser Mischung beträgt $0,5 \text{ g cm}^{-3}$ und wird im Folgenden als LD-PE (low density PE) bezeichnet. Als Matrixmaterialien mit einer mittleren Matrixdichte werden PE mit $0,94 \text{ g cm}^{-3}$ und Leichtbeton mit $1,6 \text{ g cm}^{-3}$ benutzt. Abfallfässer mit einer hohen Dichte werden durch Schwerbeton mit einer Dichte von $2,3 \text{ g cm}^{-3}$ berücksichtigt. Mit jeder dieser vier Matrixkonfigurationen wurden jeweils zwei Simulationssets mit den homogenen Verteilungen der Schlüsselnuklide ^{60}Co und ^{137}Cs berechnet. Pro Simulationsset wurden insgesamt 10^8 Primärphotonen gemäß den Emissionswahrscheinlichkeiten für die beiden Schlüsselnuklide erzeugt. Die Startpunkte der Primärphotonen wurden für die Simulation einer homogenen Radionuklidverteilung im ganzen Fassabschnitt gleichverteilt. Die Impulsrichtungen der Primärphotonen wurden, wie auch schon in Abschnitt 6.4 beschrieben, in einen Kegel mit einem Öffnungswinkel von 4° zum Detektor gezwungen. Nach der Raumwinkelkorrektur entspricht das einer ^{60}Co -Aktivität von 205,3 GBq und einer ^{137}Cs -Aktivität von 482,4 GBq.

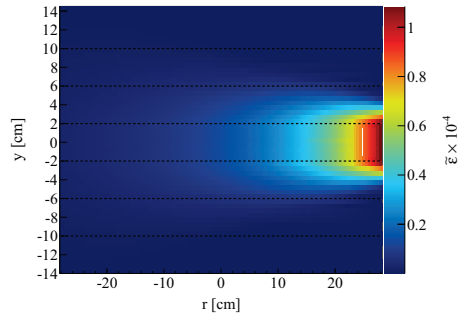
8.1.2 Integrationsgrenzen

FÜR DIE MINIMIERUNG DER RECHENZEIT wird in diesem Abschnitt analysiert, wie viele Segmente ober- und unterhalb des beprüften Segments (Referenzsegment) einen Einfluss auf die Berechnung von ϵ_{hom} nach Abschnitt 7.4 am Referenzsegment haben. Hierbei sind grundsätzlich zwei Faktoren zu berücksichtigen. Photonen, die in den Segmenten weit ober- und unterhalb des Referenzsegments emittiert werden, werden nahezu komplett durch den Kollimator absorbiert. Zusätzlich führen die Trajektorien der Photonen aus diesen Segmenten zum Detektor durch längere Strecken in der Matrix, als vergleichbare Trajektorien aus dem Referenzsegment. Dies führt zu einer weiteren intrinsischen Abschirmung der weit ober- und unterhalb des Referenzsegments liegenden Segmente. Die totale Absorptionswahrscheinlichkeit hängt somit stark von der Matrixdichte und der

Abbildung 8.1: Verteilung von $\tilde{\epsilon}_i$ für Photonen mit einer γ -Energie von 1,332 MeV (^{60}Co) in einer Abfallmatrix aus LD-PE. Der Detektor befindet sich bei $z_Q - z_D = 0$. Die gestrichelten Linien sind die Segmentgrenzen.



(a) x-y-Ebene



(b) x-z-Ebene

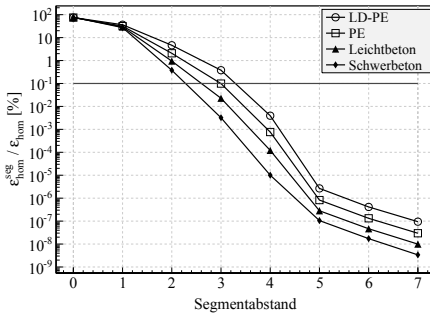
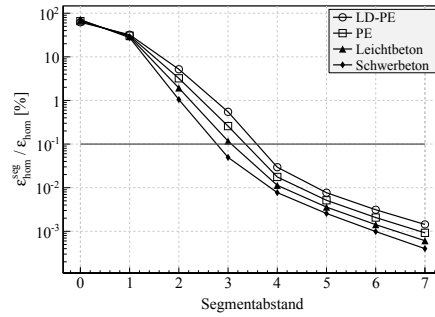
(a) ^{137}Cs ; $E_\gamma = 0,661 \text{ MeV}$ (b) ^{60}Co ; $E_\gamma = 1,332 \text{ MeV}$

Abbildung 8.2: Beitrag der anteiligen Effizienzen einzelner Segmente $\epsilon_{\text{hom}}^{\text{seg}}$ zu ϵ_{hom} als Funktion des Segmentabstands zum Referenzsegment. Hier ist 0 das Referenzsegment sowie 1 das Segment direkt oberhalb des Referenzsegments und so weiter.

Photonenergie ab. Bei hochenergetischen Photonen und bei gleichzeitig niedriger Matrixdichte (Worst Case) ist der Einfluss von weit ober- und unterhalb des Referenzsegments liegenden Segmenten auf ϵ_{hom} maximal.

DIE NUMERISCHE BERECHNUNG der radionuklidspezifischen Aktivitäten einer homogenen Radionuklidverteilung in SGSreco bedarf der Berechnung der anteiligen Effizienzen $\tilde{\epsilon}_i$ für jedes der n_V Voxel im Abfallfass. Abbildung 8.1 zeigt die durch das analytische Modell in SGSreco berechnete Verteilung von $\tilde{\epsilon}_i$ für die charakteristischen γ -Linie von ^{60}Co mit $E_\gamma = 1,332 \text{ MeV}$ in einer Matrix aus LD-PE. Das entspricht dem oben beschriebenen Worst Case Szenario. Grundsätzlich ist zu erkennen, dass der größte Informationsgehalt über die Radionuklidverteilung im äußeren Drittel des Abfalles mit $r > 15 \text{ cm}$ liegt. Photonen, die weit innerhalb der Abfallmatrix erzeugt werden, werden stark durch die Matrix absorbiert. In Abbildung 8.1 b) ist zudem zu erkennen, dass ein signifikanter Beitrag zu ϵ_{hom} auch aus den direkten Nachbarsegmenten des Referenzsegments zu erwarten ist. Erst die nächsten und übernächsten Nachbarsegmente leisten einen nur unwesentlichen Einfluss zu ϵ_{hom} am Referenzsegment.

ZUR BESTIMMUNG DER INTEGRATIONSGRENZEN wird festgelegt, dass ein Nachbarsegment nur dann berücksichtigt wird, wenn sein Anteil an ϵ_{hom} mehr als 0,1 % beträgt. Die restlichen, weit vom Referenzsegment entfernten Segmente, werden aufgrund ihrer vernachlässigbaren Beiträge zu ϵ_{hom} ignoriert. Abbildung 8.2 zeigt die anteiligen Effizienzen der einzelnen Segmente $\epsilon_{\text{hom}}^{\text{seg}}$ relativ zu ϵ_{hom} für alle Simulationssets. Erwartungsgemäß ist zu beobachten, dass die anteiligen Effizienzen für ^{137}Cs ($E_\gamma = 661 \text{ keV}$) nach außen hin aufgrund der niedrigeren Energie der charakteristischen γ -Linie und der damit verbundenen höheren Absorption in der Abfallmatrix und im Kollimator schneller als für ^{60}Co ($E_\gamma = 1332 \text{ keV}$) abnehmen. Ab dem vierten Segment ober- oder unterhalb des Referenzsegments, sind die Anteile zu ϵ_{hom} allerdings für alle Matrixdichten und bei beiden

Schlüsselnukliden weniger als 0,1 %. Es werden deswegen insgesamt sieben Segmente, drei oberhalb und drei unterhalb des Referenzsegments, für die numerische Berechnung der radionuklidspezifischen Aktivitäten in SGSreco berücksichtigt. Eine möglichst scharfe Einstellung der Integrationsgrenzen hilft die Rechenzeit zu minimieren. Die Einsparung eines weiteren Segments in der numerischen Integration wird demnach schon zu systematischen Abweichungen in einem Bereich von 2 %, aber gleichzeitig zu einer Einsparung von rund 28,6 % (2/7) an Rechenzeit führen. Eine genaue Analyse der Rechenzeiten befindet sich im folgenden Unterabschnitt. Es obliegt hierbei dem Messpersonal schärfere Einstellung der Integrationsgrenzen zu wählen und damit auf Genauigkeit zu verzichten. Besteht ein Abfallfass aus mehreren Fassabschnitten, müssen zwei weitere Effekte berücksichtigt werden. Überschreiten die Integrationsgrenzen die räumliche Ausdehnung eines Fassabschnitts, werden sie auf die zum Fassabschnitt assoziierten Segmente angepasst. Weiterhin muss berücksichtigt werden, dass die benachbarten Fassabschnitte die Messung der mittleren Zählrate \bar{T} am Referenzfassabschnitt beeinflussen können. Man spricht in diesem Fall von Cross-Talk. Der Cross-Talk macht sich hauptsächlich bei der Messung von T_{ij} an den äußeren Segmenten des Referenzfassabschnitts bemerkbar. Wird die mittlere Zählrate \bar{T} für den Referenzfassabschnitt berechnet, so werden die einzelnen Zählraten T_{ij} , die an den Segmenten ganz oben und ganz unten im Referenzfassabschnitt gemessen werden, nicht zur Berechnung von \bar{T} berücksichtigt. In diesem Fall kann der Cross-Talk durch die benachbarten Fassabschnitte gemäß der vorhergehenden Analyse auf deutlich weniger als 1 % der zu diesen Fassabschnitt assoziierten gemessenen mittleren Zählrate abgeschätzt werden.

8.1.3 Optimale Gittergröße und Rechenzeit

ZUR BESTIMMUNG DER OPTIMALEN GITTERGRÖSSE v für die numerische Berechnung der radionuklidspezifischen Aktivität einer homogenen Radionuklidverteilung, wird neben der Genauigkeit der Aktivitätsrekonstruktion bei den verschiedenen Gittergrößen auch die jeweils benötigte Rechenzeit in Betracht gezogen. Die Gittergrößen wurden dabei so gewählt, dass sie das zylindrische Volumen eines Segmentes optimal ausfüllen. Die Gittergrößen müssen daher ein Teiler des Fassdurchmessers von 56 cm und der Segmenthöhe von 4 cm sein. In dieser Studie wurden aus diesem Grund Gittergrößen aus der Menge $\{1 \text{ cm}; 0,5 \text{ cm}; 0,25 \text{ cm}; 0,2 \text{ cm}; 0,1 \text{ cm}; 0,05 \text{ cm}; 0,025 \text{ cm}; 0,02 \text{ cm}\}$ berücksichtigt. In Abbildung 8.3 ist die Abweichung der rekonstruierten Aktivität \mathcal{A}_{reco} von der Referenzaktivität der jeweiligen homogenen Radionuklidverteilung \mathcal{A}_{ref} für verschiedene Gittergrößen v gezeigt. Die Berechnungen von $\tilde{\epsilon}_i$ innerhalb von SGSreco wurden zum Vergleich mit beiden Modellen durchgeführt. An den Berechnungen auf Basis des analytischen Modells ist zu erkennen, dass ab einer Gittergröße von 0,1 cm keine Verbesserung der Genauigkeit in der

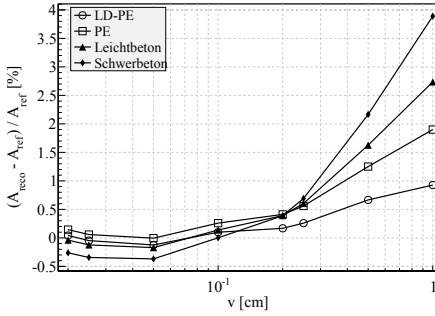
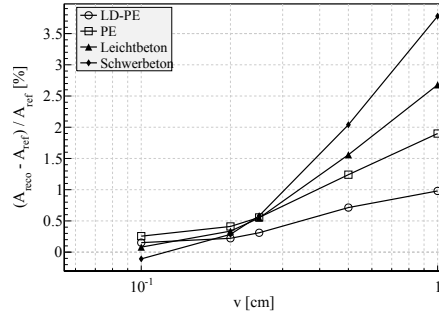
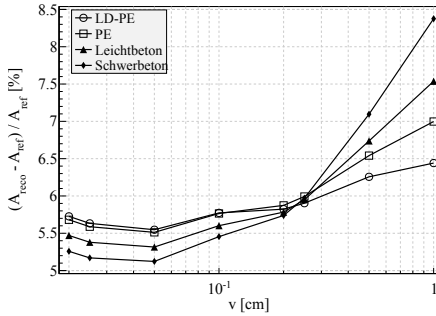
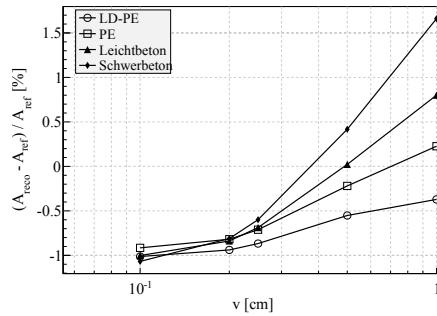
(a) ^{137}Cs ; analytisches Modell(b) ^{137}Cs ; numerisches Modell(c) ^{60}Co ; analytisches Modell(d) ^{60}Co ; numerisches Modell

Abbildung 8.3: Abweichung der rekonstruierten Aktivität A_{reco} von der Referenzaktivität A_{ref} für ein homogenes Inventar der Schlüsselnuklide ^{60}Co und ^{137}Cs in verschiedenen Matrixmaterialien als Funktion der Gittergröße.

Aktivitätsrekonstruktion zu erwarten ist. Ab dieser Gittergröße sind Fehler durch die Diskretisierung des Problems in Voxel vernachlässigbar. Mit dem analytischen Modell wird die Referenzaktivität für ^{137}Cs bei einer Gittergröße von 0,1 cm in allen Matrixkonfigurationen nahezu exakt rekonstruiert. Für ^{60}Co neigt die Aktivitätsrekonstruktion in allen Matrixkonfigurationen zu einer Überschätzung im Bereich von 5 % bis 6 %. Diese Überschätzung ist durch die systematische Unterschätzung von $\tilde{\epsilon}_i$ für die charakteristischen γ -Linien von ^{60}Co bei Positionen weit außerhalb des Sichtbereiches des Detektionssystems zurückzuführen, wie es bereits in Abschnitt 7.3.4 gezeigt wurde. Aufgrund der Unterschätzung in diesen Bereichen wird nach Gleichung (7.60) eine überschätzte Aktivität berechnet. Bei mittleren Energien im Bereich der charakteristischen γ -Linie von ^{137}Cs verschwinden diese systematischen Abweichungen im analytischen Modell, was die nahezu exakte Aktivitätsrekonstruktion von ^{137}Cs erklärt. Die Berechnung auf Basis des numerischen Modells führt aufgrund der gezeigten höheren Genauigkeit in der Berechnung von $\tilde{\epsilon}_i$ im Vergleich zum analytischen Modell grundsätzlich zu einer genaueren Aktivitätsrekonstruktion. Im Vergleich zu den Berechnungen mit dem analytischen Modell lassen sich für ^{137}Cs vergleichbare Ergebnisse erzielen, da die systematischen Abweichungen beider Modelle in der

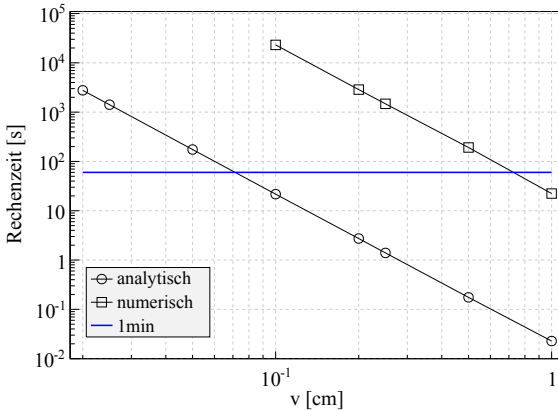


Abbildung 8.4: Rechenzeit für die Rekonstruktion von radionuklidspezifischen Aktivitäten einer homogenen Radionuklidverteilung als Funktion der Gittergröße in SGSreco. Jeder Punkt ist über alle Matrixmaterialien und die Schlüsselnuklide gemittelt. Die Berechnungen wurden auf einem 2,4GHz quad-core Intel Core i7 unter Mac OS X 10.8 durchgeführt.

Berechnung von $\tilde{\epsilon}_i$ im Energiebereich der charakteristischen γ -Linie von ^{137}Cs minimal sind. Für ^{60}Co hingegen, werden die Vorteile des numerischen Modells deutlich, da die Aktivitätsrekonstruktion bei derselben Gittergröße von 0,1 cm zu einer minimalen Unterschätzung von lediglich rund 1 % führen und damit erwartungsgemäß deutlich besser sind als die Ergebnisse auf der Basis des analytischen Modells. Die Schwankung der Genauigkeit in Abhängigkeit des Matrixmaterials liegt für beide Schlüsselnuklide in beiden Modellen bei weniger als 0,5 Prozentpunkte.

DIE RECHENZEIT für die Rekonstruktion der Aktivität in einem Abfallfass soll im Rahmen der industriellen Routinecharakterisierung nicht mehr als wenige Minuten betragen. In einer ersten Veröffentlichung zu der Rekonstruktion von Aktivitäten homogener Radionuklidverteilungen durch SGSreco wurde gezeigt, dass die Rechenzeiten bei einer Gittergröße von 0,1 cm auf Basis des analytischen Modells in einem Bereich von ca. 3 min lagen.¹⁰¹ Durch eine Restrukturierung des C++-Codes in SGSreco konnten diese Rechenzeiten drastisch reduziert werden. In Abbildung 8.4 werden die benötigten Rechenzeiten für beide Modelle, gemittelt über die beiden Schlüsselnuklide und alle Matrixmaterialien, als Funktion der Gittergröße gezeigt. Die Berechnungen wurden auf einem 2,4 GHz quad-core Intel Core i7 unter dem Betriebssystem Mac OS X 10.8 durchgeführt. Bei einer Gittergröße von 0,1 cm beträgt die Rechenzeit mit dem numerischen Modell rund 5,56 h. Nur bei einer Gittergröße von 1 cm ist die Rechenzeit hier unter einer Minute. Die Berechnungen durch das numerische Modell sind dadurch in der Routinecharakterisierung nicht anwendbar. Im analytischen Modell hingegen, liegen die Rechenzeiten bei einer Gittergröße von 0,1 cm um 20 s. Auf Grundlage dieser Analyse, wird die Rekonstruktion von Aktivitäten homogener Radionuklidinventare in SGSreco im analytischen Modell mit einer Gittergröße von 0,1 cm durchgeführt.

¹⁰¹ Krings u. a., s. Anm. 91.

8.1.4 Benchmarkstudie

¹⁰² siehe Abschnitt 4.4

¹⁰³ siehe Abschnitt 4.4 und Filß, “Specific activity of large-volume sources determined by a collimated external gamma detector”, s. Anm. 49.

IM LETZTEN TEIL dieser Studie werden die mit SGSreco berechneten radionuklidspezifischen Aktivitäten der homogenen Radionuklidinventare in den einzelnen Matrixkonfigurationen mit denen aus der konventionellen Berechnung verglichen. Der Parameter $F(x_0)$ gemäß Gleichung (4.5) für die Aktivitätsrekonstruktion durch die konventionelle Methode¹⁰² wurde zu 108,07 cm² bestimmt. Die Ergebnisse der Benchmarkstudie sind in Tabelle 8.1 zusammengefasst. Für ¹³⁷Cs sind die mit der konventionellen Methode bestimmten Aktivitäten unabhängig von Abfallmatrix mit ca. 14,5 % bis 15 % überschätzt. Bei ⁶⁰Co sind es sogar rund 23,4 %. Das ist allerdings auch aufgrund der angegebenen Genauigkeit der konventionellen Methode von rund 30 % zu erwarten.¹⁰³ Mit einer maximalen Abweichung von 5,8 % für ⁶⁰Co und 0,2 % für ¹³⁷Cs sind die Aktivitäten mit SGSreco daher deutlich genauer rekonstruiert. Damit kann gezeigt werden, dass die Aktivitätsrekonstruktion von homogenen Radionuklidinventaren der Schlüsselnuklide ⁶⁰Co und ¹³⁷Cs in einem Matrixdichtebereich von 0,5 g cm⁻³ bis 2,3 g cm⁻³ durch SGSreco die Ergebnisse im Vergleich mit der zurzeit angewandten konventionellen Methode deutlich verbessert. Es muss hierbei allerdings angemerkt werden, dass die konventionelle Methode lediglich aus einer analytischen Formel besteht und somit die Rechenzeiten quasi nicht messbar sind. Die Rechenzeiten von rund 20 s, die in SGSreco benötigt werden, sollten allerdings ebenfalls bei nahezu allen Anforderungsprofilen der Anwendung von SGSreco in der Routinecharakterisierung nicht ins Gewicht fallen.

8.2 Validierung anhand eines konditionierten Referenzfasses

DIE EXPERIMENTELLE VALIDIERUNG von SGSreco bezüglich der Aktivitätsrekonstruktion von homogenen Radionuklidinventaren wird anhand eines konditionierten 2001 Referenzfasses durchgeführt. Das Referenzfass besteht aus einer betonierten aktiven Matrix mit homo-

Tabelle 8.1: Ergebnisse der Aktivitätsrekonstruktion von homogenen Radionuklidinventaren mit der konventionellen Methode und mit SGSreco auf der Basis von Simulationen. A ist die rekonstruierte Aktivität und $\Delta A/A$ ist die Abweichung der rekonstruierten Aktivität von der Referenzaktivität.

Material		Konventionell		SGSreco	
		A [GBq]	$\Delta A/A$ [%]	A [GBq]	$\Delta A/A$ [%]
⁶⁰ Co	LD-PE	251,5	23,5	217,2	5,80
¹³⁷ Cs	LD-PE	552,5	14,5	482,8	0,08
⁶⁰ Co	PE	252,5	23,2	217,1	5,75
¹³⁷ Cs	PE	554,0	15,0	483,6	0,24
⁶⁰ Co	Leichtbeton	252,9	23,4	216,8	5,60
¹³⁷ Cs	Leichtbeton	554,6	15,0	483,0	0,01
⁶⁰ Co	Schwerbeton	252,8	23,3	216,5	5,46
¹³⁷ Cs	Schwerbeton	553,1	14,7	482,4	0

genen Radionuklidinventaren der Schlüsselnuklide ^{60}Co und ^{137}Cs . Der Beton hat eine Dichte von 2 g cm^{-3} . Am Datum der Messung betrugen die ^{60}Co -Aktivität und die ^{137}Cs -Aktivität $0,938\text{ MBq}$ beziehungsweise $54,7\text{ MBq}$ mit jeweils $\pm 10\%$ Unsicherheit. Der Parameter $F(x_0)$ gemäß Gleichung (4.5) für die Aktivitätsberechnung durch die konventionelle Methode wurde anlog zum vorherigen Abschnitt zu $108,07\text{ cm}^2 \pm 9,21\%$ bestimmt. Aufgrund der niedrigen ^{60}Co -Aktivität und der relativ hohen Matrixdichte, wurden zwei unabhängige SGS-Messungen durchgeführt. Zum einen wurde eine Kurzzeitmessung im Standardscanmodus für SGS-Messungen mit Winkelschritten von 30° und einer gesamten Messzeit von 1 h durchgeführt, wie es in Abschnitt 6.2 beschrieben ist. Zum anderen wurde eine Langzeitmessung mit Winkelschritten von 45° und einer gesamten Messzeit von 8 h durchgeführt, um die Zählraten bei den beiden charakteristischen γ -Linien von ^{60}Co mit ausreichender Statistik zu messen. In Tabelle 8.2 sind die Ergebnisse dieser Messung zusammengefasst.

WIE ERWARTET weisen die rekonstruierten Aktivitäten durch SGSreco und die konventionelle Methode die selben systematischen Abweichungen auf, wie bereits in der Simulationsstudie gezeigt wurde. Auch hier lässt sich daher die Überlegenheit der Rekonstruktion mit SGSreco feststellen. Die maximale Abweichung bei der Langzeitmessung von knapp 10% für ^{60}Co , ist auf die sehr niedrigen Zählraten von circa $0,2\text{ s}^{-1}$ zurückzuführen. Neben der Genauigkeit ist zudem ersichtlich, dass auch die Verlässlichkeit durch die Rekonstruktion von Unsicherheiten um rund 10% durch die konventionelle Methode auf rund $4,5\%$ durch SGSreco gesenkt werden konnte. Die Unterschiede in den Unsicherheiten beruhen im Wesentlichen auf dem Parameter $F(x_0)$, der in der Regel mit Fehlern um die 10% behaftet ist und in der Rekonstruktion durch SGSreco nicht benötigt wird. Die Unsicherheiten werden in SGSreco maßgeblich durch den Fehler aus der Effizienzkalibration dominiert, der in der Regel in einem Bereich um circa 5% liegt. Vergleicht man diese Abweichung abgesehen von der schwachen ^{60}Co -Quelle mit den zu erwartenden Abweichungen der realen Aktivitäten von $\pm 10\%$ je Radionuklid, so liegen alle mit SGSreco rekonstruierten Aktivitäten innerhalb dieser Spanne und sind somit mit den Erwartungen verträglich. Die mit der konventionellen Methode berechneten Aktivitäten überschreiten diese Bandbreite zum Teil deutlich. Durch die Messung eines konditionierten Referenzfasses

	Konventionell			SGSreco		
	A [MBq]	σ_A [%]	$\Delta A/A$ [%]	A [MBq]	σ_A [%]	$\Delta A/A$ [%]
Kurzzeitmessung						
^{137}Cs	65,18	10,2	19,2	56,59	4,41	3,46
Langzeitmessung						
^{137}Cs	62,23	10,2	13,8	54,03	4,38	-1,22
^{60}Co	1,195	10,3	27,3	1,026	4,65	9,83

Tabelle 8.2: Ergebnisse der Aktivitätsrekonstruktion von homogenen Radionuklidinventaren in einem betonierten Referenzfass mit der konventionellen Methode und mit SGSreco. A ist die rekonstruierte Aktivität und σ_A ist ihre Unsicherheit. $\Delta A/A$ ist die Abweichung der rekonstruierten Aktivität von der Referenzaktivität.

konnte somit die radionuklidspezifische Aktivitätsrekonstruktion von homogenen Radionuklidinventaren durch SGSreco validiert werden und die Verbesserung hinsichtlich der Genauigkeit und der Verlässlichkeit (Unsicherheiten) im Vergleich zur konventionellen Methode gezeigt werden. Hier ist weiterhin anzumerken, dass die Aktivitäten durch die konventionelle Methode stets überschätzt wurden, was für die optimale Ausnutzung der Kapazität des Endlager Konrads nachteilig ist¹⁰⁴.

¹⁰⁴ siehe Abschnitt 2.4

9

Rekonstruktion heterogener Radionuklidinventare - Simulationsstudie

INHALT:

9.1	Zielsetzung	112
9.2	Simulationssets	112
9.3	Anzahl an erforderlichen χ^2 -Iterationen	114
9.4	Benchmarkberechnungen bei einer Punktquelle	115
9.5	Systematikstudie zum Einfluss des Scanmodus	120
9.6	Modellwahl, statistische Unsicherheiten und Rechenzeiten	123
9.7	Benchmarkberechnung bei unbekannten Matrixdichten	127
9.8	Benchmarkberechnung bei Ensembles aus mehreren Punktquellen	128
9.9	Evaluation eines Gütekriteriums	132
9.10	Systematikstudie für ausgedehnte Quellen	133
9.11	Maximal nicht-detektierbare Aktivitäten	136

9.1 Zielsetzung

DIE REKONSTRUKTION der Aktivität und der Position von Punktquellen in Abfallfässern ist abhängig von einer Vielzahl an Parametern. Dies sind zum einen solche Parameter, die nur die Rekonstruktion durch SGSreco betreffen und zum anderen Parameter, die die Messung betreffen. Auf der Seite des Rekonstruktionsalgorithmus muss die Anzahl an Iterationen für die χ^2 -Anpassung so festgelegt werden, dass bei einer beliebigen Konfiguration an Punktquellen stets annehmbare Startwerte für die $\log(\mathcal{L})$ -Anpassung bereitgestellt werden¹⁰⁵. Es muss darüber hinaus untersucht werden, ob die Rekonstruktion mit dem analytischen Modell eine hinreichende Genauigkeit bietet, oder ob trotz der längeren Rechenzeiten auf das numerische Modell zurückgegriffen werden muss. Auf der Seite der Messparameter wird untersucht, ob durch SGS-Messungen im Standardscanmodus bereits bei allen möglichen Positionen einer Punktquelle eine genaue Aktivitätsrekonstruktion garantiert werden kann, oder ob auf den Alternativscanmodus zurückgegriffen werden muss. Der Alternativscanmodus bietet grundsätzlich eine im Winkel höher aufgelöste Zählratenverteilung¹⁰⁶. Die Aktivitätsrekonstruktion lässt in diesem Fall zwangsläufig eine bessere Verlässlichkeit und Genauigkeit erwarten. Jedoch gilt es diesen Vorteil gegen die nachteilige Verdopplung der Messzeit abzuwägen.

IM RAHMEN VON BENCHMARKBERECHNUNGEN wird die Genauigkeit und Verlässlichkeit der Rekonstruktion von Punktquellen im Standardmodus¹⁰⁷ sowohl bei einzelnen als auch bei Ensembles von Punktquellen desselben Radionuklids in verschiedenen Abfallmatriizes bestimmt und mit der konventionellen Aktivitätsrekonstruktion verglichen. Unter Verlässlichkeit werden hier die zu erwartenden Schwankungsbreiten der Aktivitätsrekonstruktion sowie ihre systematischen und statistischen Unsicherheiten zusammengefasst. Weiterhin werden Benchmarkberechnungen mit dem Matrixmodus¹⁰⁸ bei Abfällen mit einer unbekannten Matrixdichte durchgeführt. Zuletzt werden systematische Unsicherheiten quantifiziert, die durch eine Abweichung der Radionuklidverteilungen von den Annahmen eines homogenen Anteils mit zusätzlichen Punktquellen abweicht, wie es in SGSreco gefordert wird (idealisiertes Radionuklidinventar). Wie bereits in Abschnitt 5.1 erklärt, sind solche detaillierten Studien nur durch Simulationen möglich, da eine Herstellung von Referenzfässern aufgrund der Vielzahl an möglichen Matrix- und Quellkonfigurationen nicht realisierbar ist.

9.2 Simulationssets

IN DIESER SIMULATIONSSTUDIE werden die Schlüsselnuklide ⁶⁰Co sowie ¹³⁷Cs und die Matrixmaterialien, wie sie in Tabelle 9.1 aufge-

¹⁰⁵ siehe hierzu Abschnitt 7.5

¹⁰⁶ siehe hierzu Abschnitt 6.2

¹⁰⁷ siehe Tabelle 7.3 Modus S

¹⁰⁸ siehe Tabelle 7.3 Modus M

listet sind, berücksichtigt¹⁰⁹. Zur Berechnung von Zählratenverteilungen, die von einem Ensemble an Punktquellen generiert werden, werden pro Schlüsselnuklid und Matrixmaterial unabhängige Simulationssets berechnet. Bei jedem dieser unabhängigen Simulationssets wird die Punktquelle an einer anderen Referenzposition angenommen. Die radiale Referenzposition r_Q liegt zwischen 1 cm und 25 cm und die polare Referenzposition ϕ_Q zwischen 0° und 15°. Mit Abständen von 1 cm in radialer Richtung und Abständen von 1° im Polarwinkel ergeben sich innerhalb dieser Begrenzung insgesamt 400 Referenzpositionen der Punktquelle. Die Höhenposition der Punktquelle z_Q ist dabei stets so gewählt, dass die Quelle auf halber Höhe des ersten Segments liegt. Unter der Annahme von SGS-Messungen im Standardscanmodus gelten diese Positionen als unabhängig, da man Zählratenverteilungen von Punktquellen an allen anderen Positionen im Abfallfass durch eine geeignete Verschiebung und Umordnung der Zählratenverteilung von Punktquellen an den Referenzpositionen berechnen kann. Für den Alternativscanmodus sind nur die 200 Positionen bis $\phi_Q \leq 7^\circ$ als unabhängig zu bezeichnen. Soll beispielsweise die Zählratenverteilung einer Punktquelle bei $r_Q = 10$ cm und $\phi_Q = 63^\circ$ im Standardscanmodus berechnet werden, so wird als Grundlage die Zählratenverteilung einer Punktquelle bei der Referenzposition $r_Q = 10$ cm und $\phi_Q = 3^\circ$ benutzt und entsprechend um zwei Sektoren verschoben. Zählratenverteilungen von Ensembles mehrerer Punktquellen an beliebigen Positionen im Abfallfass, können durch eine Addition der entsprechend den gewünschten Positionskoordinaten verschobenen Referenzzählratenverteilungen berechnet werden. Zählraten, die von verschiedenen Punktquellen am selben Sektor gemessen werden, werden vor der Addition gemäß einer Poisson-Verteilung verschmiert. Diese Verschmierung minimiert mögliche Korrelationen addierter Zählratenverteilungen, für deren Berechnung zumindest zum Teil auf dieselben Referenzzählratenverteilungen zurück gegriffen wurde.

DURCH DIE SIMULATION sphärisch ausgedehnter Quellen werden in dieser Studie Radionuklidinventare, die von den angenommenen Idealisierungen abweichen, berücksichtigt. Pro Matrixmaterial werden Simulationssets mit sphärisch ausgedehnten Quellen, die Radien zwischen 0,5 cm und 5 cm haben, berechnet. Pro Querradius liegt das Zentrum der Quelle an Positionen zwischen 5 cm und 20 cm. Bei einer Variation des Querradius in Schritten von 0,5 cm und einer Variation der Referenzposition in Schritten von 5 cm ergeben sich so 40 Simulationssets pro Matrixmaterial und Schlüsselnuklid. Die Emissionsorte der Primärphotonen sind innerhalb der jeweiligen Sphären gleichverteilt.

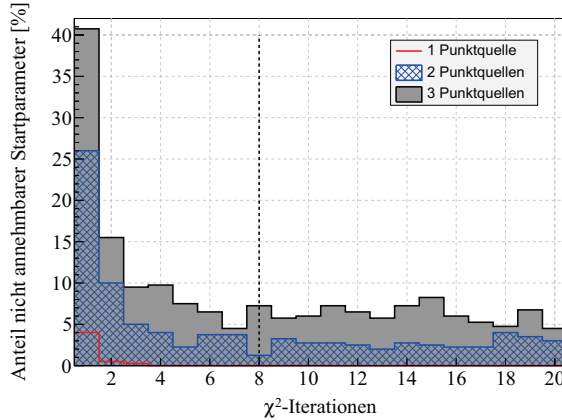
IN EINEM SIMULATIONSET wurden pro Sektorspektrum 10⁸ Primärphotonen gemäß den jeweiligen Emissionswahrscheinlichkeiten erzeugt. An jedem der vier berücksichtigten Segmente werden 24 Sektoren analysiert. Dies entspricht einer Rotationsschrittweite $\Delta\theta$

¹⁰⁹ Die Wahl dieser Nuklide und Matrixmaterialien wurde bereits in Abschnitt 9.2 motiviert.

Material	Dichte [g cm ⁻³]
LD-PE	0,5
PE	0,94
Leichtbeton	1,6
Schwerbeton	2,3

Tabelle 9.1: In der Simulationsstudie berücksichtigte Matrixmaterialien und ihre Dichten.

Abbildung 9.1: Anteil nicht annehmbarer Startparameter für die $\log(\mathcal{L})$ -Anpassung als Funktion der Anzahl an χ^2 -Iterationen. Die Abfallmatrix besteht aus LD-PE und die Zählratenverteilungen sind im Alternativscanmodus berechnet.



von 15°. Durch eine entsprechende Verarbeitung der simulierten Spektren aus diesen Datensets werden Zählratenverteilungen sowohl im Standard- als auch im Alternativscanmodus bestimmt. Im Gegensatz zu den Scanmodi bei SGS-Messungen nach Abschnitt 6.2, werden die Zählratenverteilungen in der Simulationsstudie nicht für eine kontinuierliche, sondern für eine diskrete Fassrotation berechnet. Es werden weiterhin dieselben Optimierungen zur Einsparung an Simulationszeit angewandt, wie sie in Abschnitt 9.2 beschrieben werden. Die Referenzaktivitäten der Quellen ergeben sich dementsprechend identisch zu denen in Abschnitt 9.2.

9.3 Anzahl an erforderlichen χ^2 -Iterationen

DIE ERFORDERLICHE ANZAHL AN χ^2 -ITERATIONEN, die die Bestimmung von annehmbaren Startparametern für die $\log(\mathcal{L})$ -Anpassung stets sicherstellt, wird durch die Analyse von jeweils 400 Zählratenverteilungen von einer bis drei Punktquellen in einer LD-PE-Matrix im Alternativscanmodus untersucht. Die berechneten Zählratenverteilungen werden zuerst durch die First-Guess-Rekonstruktion auf Peaks untersucht und anschließend durch die iterative χ^2 -Anpassung analysiert. Jede dieser Analysen wird mit einer bis zu zwanzig Iterationen durchgeführt, bei denen jeweils andere Startwerte für die radiale Position jeder identifizierten Punktquelle, gleichverteilt zwischen 0 cm und 25 cm, festgelegt werden. Rekonstruierte Parameter werden für die $\log(\mathcal{L})$ -Anpassung als annehmbare Startparameter bezeichnet, falls folgende Kriterien erfüllt sind:

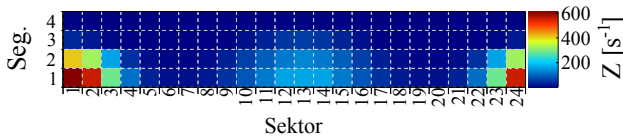
1. Der Abstand zwischen der Referenzposition und der rekonstruierten Position jeder Quelle muss kleiner als 5 cm sein.
2. Die rekonstruierte Aktivität jeder einzelnen Punktquelle muss in der selben Größenordnung sein, wie die Referenzaktivität der jeweiligen Punktquelle.

DER ANTEIL NICHT ANNEHMBARER STARTPARAMETER nach jedem Iterationsschritt ist in Abbildung 9.1 dargestellt. Nach nur einer Iteration sind bei einer einzelnen Punktquelle lediglich 5 % der rekonstruierten Parameter als nicht annehmbar zu bezeichnen. Nach bereits vier Iterationen sind die Rekonstruktionsparameter in diesem Fall dann immer als annehmbar zu bezeichnen. Bei Ensembles von zwei beziehungsweise drei Punktquellen, liegt der Anteil nicht annehmbarer Startparameter nach nur einer Iteration im Bereich von 26 % beziehungsweise 41 %. Spätestens nach acht Iterationen ist dieser Anteil, unabhängig von der Anzahl der Punktquellen, konstant. Bei drei Punktquellen liegt er zwischen 7 % und 8 %. Bei zwei Punktquellen liegt er sogar nur bei rund 4 %. In SGSreco werden somit acht χ^2 -Iterationen als Standardwert festgesetzt, da so auch für Ensembles mehrerer Punktquellen mit größtmöglicher Sicherheit annehmbare Startparameter bestimmt werden.

9.4 Benchmarkberechnungen bei einer Punktquelle

DIE GENAUIGKEIT UND DIE VERLÄSSLICHKEIT der Rekonstruktion einer Punktquelle hängt maßgeblich von der erzielten Winkelauflösung durch den Scanmodus ab. Exemplarisch werden in Abbildung 9.2 daher die Zählratenverteilungen im Standard- und im Alternativscanmodus¹¹⁰ einer ^{60}Co -Punktquelle bei der Referenzposition $r_Q = 10\text{ cm}$, $\phi_Q = 0^\circ$ und $z_Q = 2\text{ cm}$ in einer LD-PE-Matrix mitein-

¹¹⁰ siehe Tabelle 6.2



(b) Alternativscanmodus

Abbildung 9.2: Zählratenverteilungen einer ^{60}Co -Punktquelle bei der Referenzposition $r_Q = 10\text{ cm}$, $\phi_Q = 0^\circ$ und $z_Q = 2\text{ cm}$ in einer Matrix aus LD-PE.

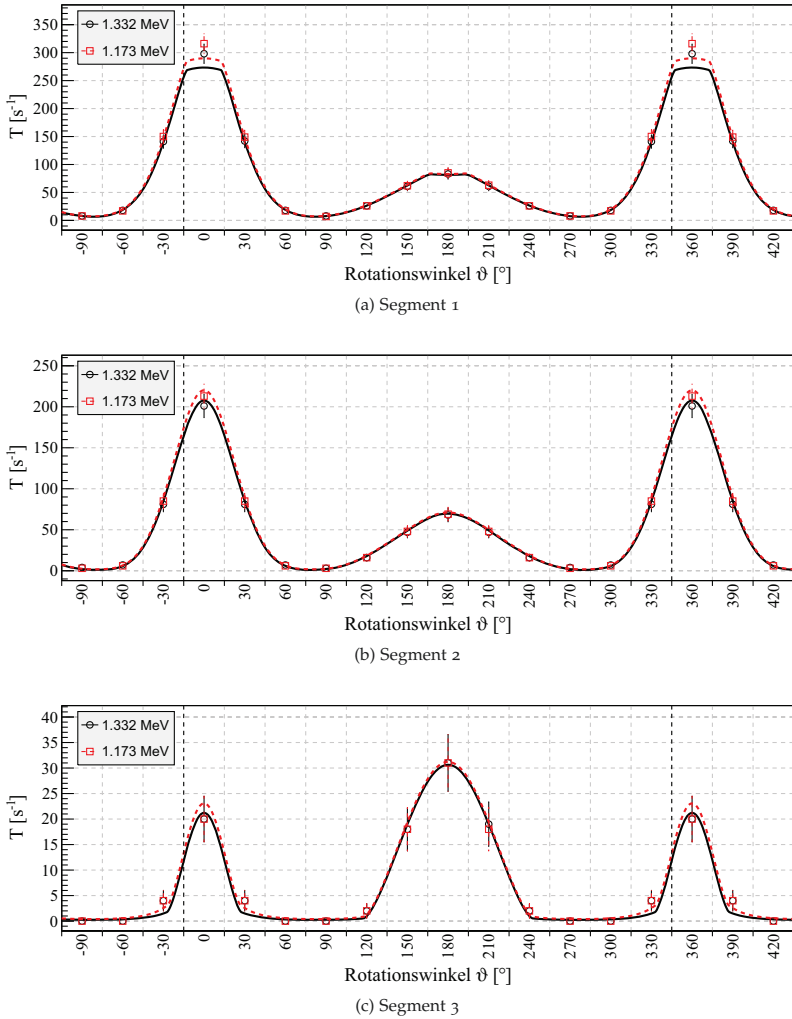


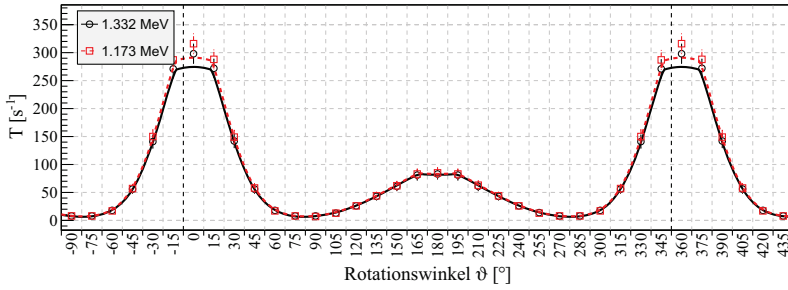
Abbildung 9.3: Simulierte (Punkte) und rekonstruierte (Linien) Zählratenverteilung für eine ^{60}Co -Punktquelle in einer Matrix aus LD-PE bei $r_Q = 10\text{ cm}$, $\phi_Q = 0^\circ$ und $z_Q = 2\text{ cm}$. Es wurde der Standardscanmodus benutzt. Zur besseren Visualisierung ist die Zählratenverteilung von -15° bis -90° und von 360° bis 435° zyklisch erweitert.

auf zwölf Sektormessungen für den Hauptpeak und rund zehn Sektormessungen für den Spiegelpeak. Da sich die Anzahl der relevanten Sektormessungen im Alternativscanmodus nahezu verdoppelt hat, wird erwartet, dass die statistischen Unsicherheiten der rekonstruierten Parameter einer Punktquelle zwischen Messungen im Standard- und im Alternativscanmodus um den Faktor $\sqrt{2}$ abnehmen.

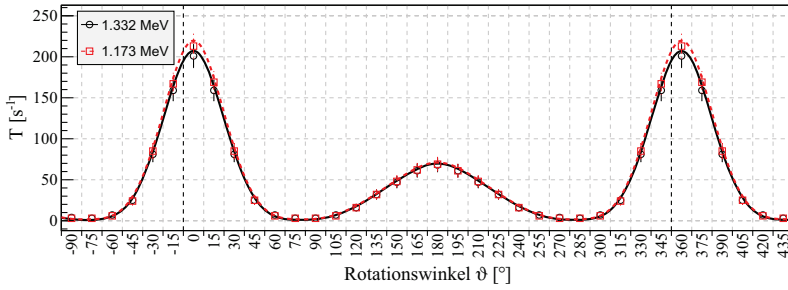
DIE ERGEBNISSE DER REKONSTRUKTION sind in den Abbildungen 9.3 und 9.4 für den Standard- beziehungsweise den Alternativscanmodus¹¹¹ dargestellt. Die Rekonstruktion wurde im Standardmodus¹¹² mit dem analytischen Modell durchgeführt. Die Übereinstimmung der rekonstruierten mit den simulierten Zählratenverteilungen ist in allen Segmenten sehr gut. Die rekonstruierten Zählratenverteilungen

¹¹¹ siehe Tabelle 6.2

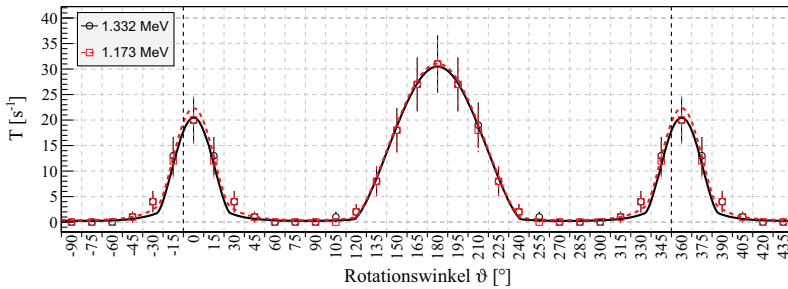
¹¹² siehe Tabelle 7.3 Modus S



(a) Segment 1



(b) Segment 2



(c) Segment 3

gen sind in beiden Scanmodi nahezu identisch. Das Maximum des Hauptpeaks wird jedoch systematisch leicht unterschätzt. Diese Unterschätzung begründet sich in den systematischen Ungenauigkeiten des analytischen Modells, wie in Abschnitt 7.3.4 erläutert. Hier wurde gezeigt, dass die Berechnung von Zählraten durch das analytische Modell bei Sektormessungen, in denen die ^{60}Co -Punktquelle nicht im Sichtfeld des kollimierten Detektionssystems ist, zu systematischen Unterschätzungen führt. Die Berechnungen der Zählraten im analytischen Modell sind daher im Bereich der Flanken des Hauptpeaks systematisch unterschätzt. Bei der Rekonstruktion führt das zu einer Unterschätzung der radialen Position der Punktquelle und somit zu einer Verbreiterung des Hauptpeaks. Die Flanken des Hauptpeaks werden dadurch optimaler angepasst. In Tabelle 9.2 sind die Rekonstruktionssparameter zusammengefasst. Erwartungsgemäß ist die

Abbildung 9.4: Simulierte (Punkte) und rekonstruierte (Linien) Zählratenverteilung für eine ^{60}Co -Punktquelle in einer Matrix aus LD-PE bei $r_Q = 10\text{ cm}$, $\phi_Q = 0^\circ$ und $z_Q = 2\text{ cm}$. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt. Zur besseren Visualisierung ist die Zählratenverteilung von -15° bis -90° und von 360° bis 435° zyklisch erweitert.

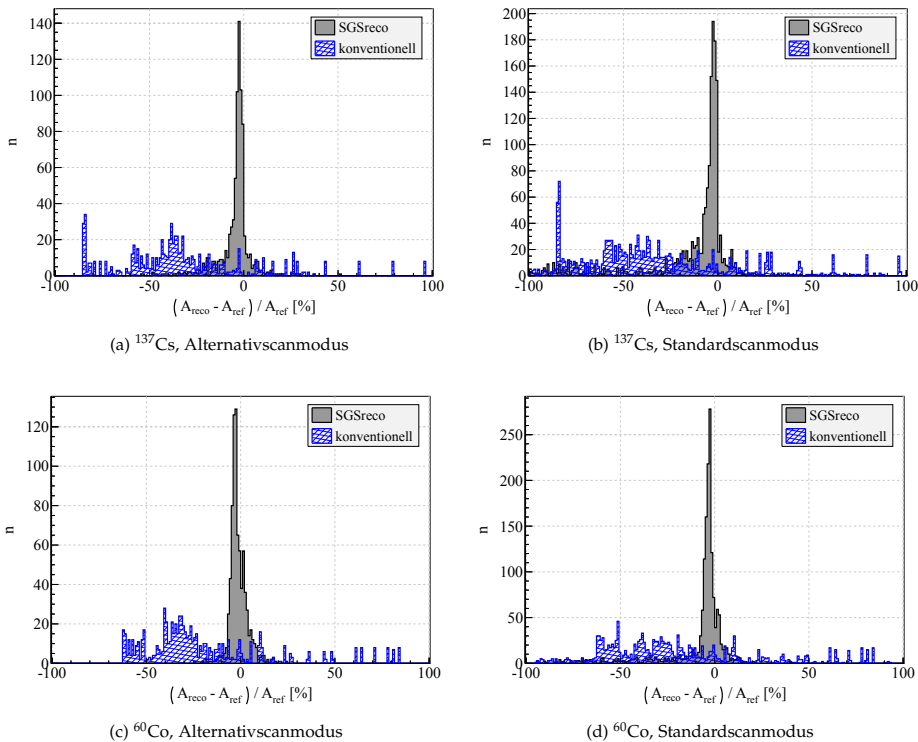
Tabelle 9.2: Ergebnisse der rekonstruierten Parameter einer ^{60}Co -Punktquelle in einer Matrix aus LD-PE bei $r_Q = 10\text{ cm}$, $\phi_Q = 0^\circ$ und $z_Q = 2\text{ cm}$. $\Delta A/A$ ist die Aktivitätsabweichung und $\sigma_{A\pm}$ ist die Unsicherheit der Aktivitätsabweichung.

Scanmodus	r_Q [cm]	ϕ_Q [°]	z_Q [cm]	$\Delta A/A$ [%]	σ_{A+} [%]	σ_{A-} [%]
Standard	9,58	0,0387	2,34	-4,8	2,08	2,12
Alternativ	9,60	0,0522	2,32	-4,5	1,47	1,49

rekonstruierte radiale Position der Punktquelle um wenige mm unterschätzt. Insgesamt ist die rekonstruierte Position aber nur circa 0,5 cm von der Referenzposition entfernt. Die rekonstruierten Aktivitäten sind in beiden Scanmodi gleichermaßen mit rund 5 % unterschätzt. In den Unsicherheiten der rekonstruierten Aktivitäten zeigt sich, wie erwartet, ein Unterschied von ungefähr $\sqrt{2}$ bei der Verdopplung der Sektormessungen im Alternativscanmodus.

FÜR DIE DETAILLIERTE QUANTIFIZIERUNG DER GENAUIGKEIT der Aktivitätsrekonstruktion einzelner Punktquellen und ihrer Verbesserung im Vergleich zur konventionellen Methode, wird jede der 400 Referenzzählratenverteilungen für einzelne Punktquellen in den verschiedenen Matrixmaterialien analysiert. Die Verteilungen der Abweichungen von den rekonstruierten zu den Referenzaktivitäten sind in Abbildung 9.5 im Vergleich mit den Aktivitätsabweichungen aus der Rekonstruktion mit der konventionellen Methode dargestellt. Die

Abbildung 9.5: Häufigkeitsverteilung der Abweichungen zwischen den rekonstruierten Aktivitäten und den Referenzaktivitäten im Vergleich von SGSreco und der konventionellen Methode.



Verteilungen der Aktivitätsabweichungen aus der Rekonstruktion durch SGSreco zeigen eine starke Anhäufung bei einer Genauigkeit von rund -4% bis -1% . Bei wenigen Ausnahmen sind insbesondere im Standardscanmodus deutliche Unterschätzungen festzustellen. Dieser Effekt wird in Abschnitt 9.5 detaillierter analysiert. In Tabelle 9.3 sind der Median $\tilde{\mu}$, der Mittelwert μ und die Standardabweichung σ der Aktivitätsabweichungsverteilungen zusammengefasst. Durch den Median der Verteilungen lässt sich die zu erwartende Genauigkeit der Aktivitätsrekonstruktion einzelner Punktquellen in allen Matrixmaterialien auf $-2,4\%$ und $-3,8\%$ abschätzen. Die zum Teil großen Unterschiede zwischen dem Mittelwert und dem Median der Aktivitätsabweichungen im Standardscanmodus, deuten auf die bereits beschriebene Schiefeit dieser Verteilungen in Richtung einer systematischen Unterschätzung hin. Die Aktivitätsrekonstruktion für ^{60}Co ist im Vergleich zu ^{137}Cs im Median grundsätzlich um circa 0,3 bis 0,7 Prozentpunkte genauer und die Standardabweichung der Aktivitätsabweichungsverteilungen sind um einen Faktor von zwei bis drei kleiner. Das ist darauf zurückzuführen, dass bei den Rekonstruktionen von ^{60}Co -Punktquellen zwei charakteristische γ -Linien zur gleichzeitigen Analyse vorhanden sind. Bei ^{137}Cs ist es nur eine charakteristische γ -Linie. Die größere Datengrundlage für ^{60}Co -Punktquellen führt daher zu einer genaueren und verlässlicheren Rekonstruktion. Zwischen den Aktivitätsrekonstruktionen auf der Grundlage des Alternativ- und des Standardscanmodus, ist im Median eine um durchschnittlich einen Prozentpunkt bessere Genauigkeit festzustellen. Zudem sind die Breiten der Aktivitätsabweichungsverteilungen um einen Faktor von drei bis vier schmaler. Es ist weiterhin keine signifikante Schiefeit der Aktivitätsabweichungsverteilungen mehr festzustellen. Die Aktivitätsabweichungen aus der Rekonstruktion mit der konventionellen Methode reichen nahezu unabhängig vom Schlüsselnuklid und Scanmodus von Unterschätzungen um bis zu -100% bis zu Überschätzungen um zum Teil mehrere Größenordnungen. Der Anteil an rekonstruierten Aktivitäten mit der konventionellen Methode, der zufällig im Bereich von $\tilde{\mu} \pm \sigma$ der jeweiligen Verteilung aus SGSreco liegt, beträgt für den Standardscanmodus nur rund 23 % und für den Alternativscanmodus sogar nur rund 7 %. Eine verlässliche Aktivitätsrekonstruktion von heterogenen Radionuklidinventaren ist mit dieser Methode daher ausgeschlossen.

DIE GENAUIGKEIT DER POSITIONSREKONSTRUKTION einer Punktquelle wird durch den absoluten Abstand Δr zwischen der rekonstruierten Position und der Referenzposition quantifiziert. In Abbildung 9.6 ist die Häufigkeitsverteilung von Δr dargestellt. Abgesehen von wenigen Ausnahmen, ist die Abweichung in der Positionsrekonstruktion bei beiden Scanmodi für alle Konfigurationen von Punktquellen und Abfallmatrizes besser als 6 mm. Der Anteil an Ausnahmen mit größeren Abweichungen von bis zu 3 cm ist im Alternativscanmodus erwartungsgemäß deutlich geringer. Gemäß Tabelle 9.4, liegt die

		$\tilde{\mu}$ [%]	μ [%]	σ [%]
^{60}Co	S	-3,10	-7,78	15,9
^{60}Co	A	-2,40	-1,44	4,50
^{137}Cs	S	-3,80	-14,2	24,5
^{137}Cs	A	-2,70	-4,39	8,86

Tabelle 9.3: Median $\tilde{\mu}$, Mittelwert μ und Standardabweichung σ der Aktivitätsabweichungsverteilungen. S ist der Standardscanmodus und A ist der Alternativscanmodus.

		$\tilde{\mu}$ [mm]
^{60}Co	S	3,68
^{60}Co	A	3,45
^{137}Cs	S	3,02
^{137}Cs	A	2,02

Tabelle 9.4: Median $\tilde{\mu}$ der Positionsabweichungsverteilungen. S ist der Standardscanmodus und A ist der Alternativscanmodus.

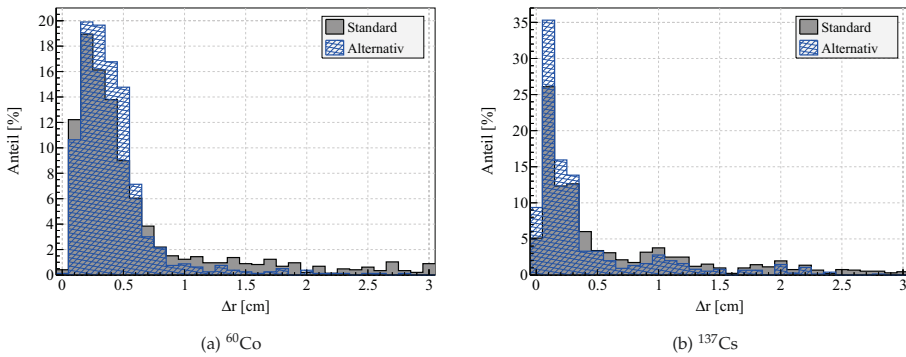


Abbildung 9.6: Häufigkeitsverteilung der absoluten Abweichungen zwischen den rekonstruierten Positionen und den Referenzpositionen.

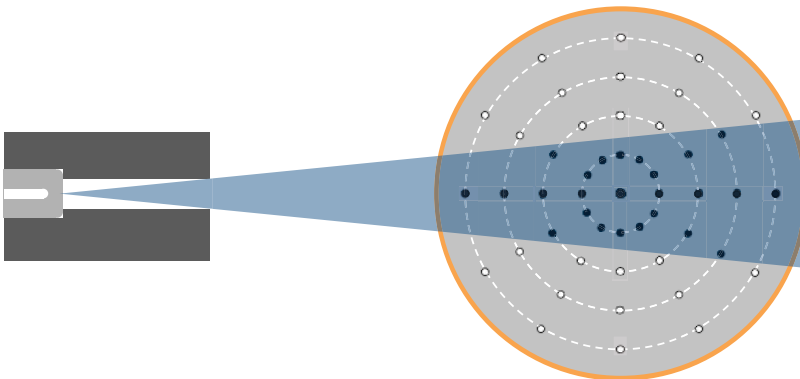
Genauigkeit der Positionsrekonstruktion von ^{60}Co -Punktquellen für beide Scanmodi in einem Bereich von 3,4 mm bis 3,7 mm. Bei ^{137}Cs sind es sogar nur 2 mm bis 3 mm.

9.5 Systematikstudie zum Einfluss des Scanmodus

IM LETZTEN ABSCHNITT wurde gezeigt, dass die Aktivitäts- und Positionsrekonstruktion einzelner Punktquellen bei verschiedenen Matrixmaterialien grundsätzlich sehr genau ist. Gleichzeitig wurde allerdings auch gezeigt, dass die Aktivitätsabweichungen bei wenigen Ausnahmen vor allem im Standardscanmodus¹¹³ zu deutlichen Unterschätzungen neigen. Das ist ein Hinweis darauf, dass je nach Position der Punktquelle und je nach Matrixdichte eine systematisch unterschiedliche Genauigkeit bei der Rekonstruktion zu erwarten ist. In Abbildung 9.7 ist die Änderung des Informationsgehalts über eine Punktquelle in Abhängigkeit von ihrer Position durch SGS-Messungen im Standardscanmodus mit diskreten Fassrotationen schematisch dargestellt. Ist die Position einer Punktquelle nahe am Fasszentrum,

¹¹³ siehe Tabelle 6.2

Abbildung 9.7: Schematische Darstellung für SGS-Messung von Punktquellen an verschiedenen radialen Positionen in einem Abfallfass mit dem Standardscanmodus bei diskreten Fassrotationen. Der blau gefärbte Bereich ist der Sichtbereich des Detektionssystem aufgrund seiner Kollimation. Die einzelnen Punkte deuten die Position der Punktquelle relativ zum den Detektionssystem bei den einzelnen Sektormessungen an. An den geschlossenen Punkten liegt die Punktquelle im Sichtfeld des Detektionssystems.



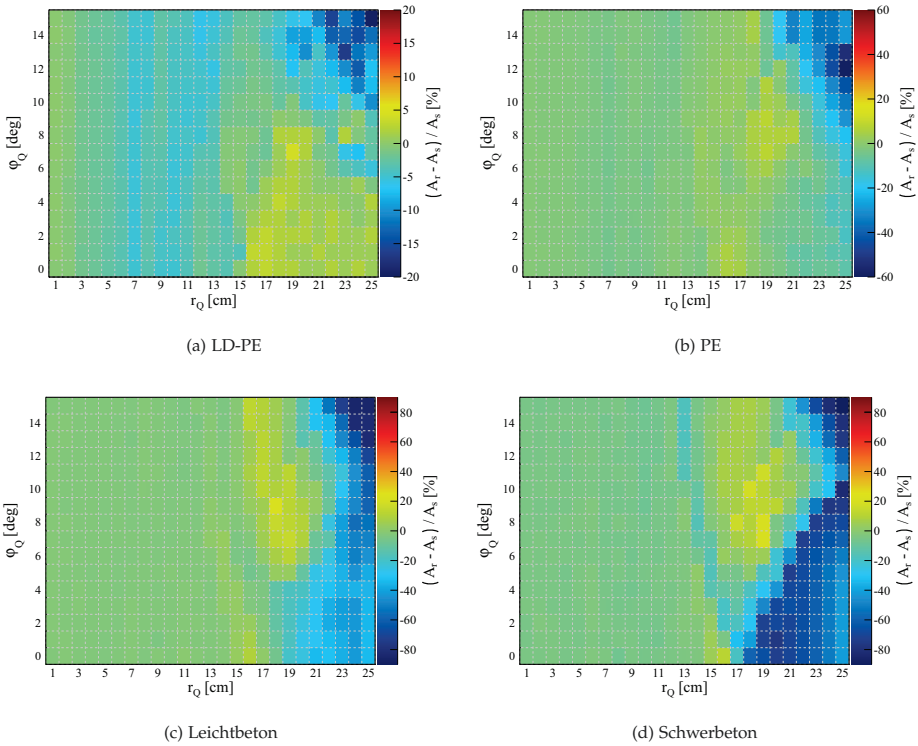


Abbildung 9.8: Aktivitätsabweichungen aus der Rekonstruktion von ^{60}Co -Punktquellen als Funktion der Referenzposition (r_Q und ϕ_Q) für alle Matrixmaterialien auf der Basis des Standardscanmodus mit diskreten Fassrotationen.

bleibt sie in allen Sektormessungen im Sichtfeld des kollimierten Detektionssystems. Ihre charakteristische Strahlung kann dann je nach γ -Energie, Matrixdichte und Position in allen Sektormessungen nachgewiesen werden. Je weiter innen die Punktquelle liegt, desto geringer sind die Unterschiede zwischen dem Haupt- und dem Spiegelpeak. Die Matrixdichte beeinflusst aus diesem Grund die Rekonstruktion innen liegender Punktquellen nur unwesentlich. Ist die Punktquelle weit vom Fasszentrum entfernt, rotiert sie zum Teil schon nach einem Rotationsschritt aus dem Sichtbereich des kollimierten Detektionssystems heraus. Je nach γ -Energie und Matrixdichte wird die charakteristische γ -Strahlung einer weit außen liegenden Punktquelle bei Sektormessungen im Bereich des Spiegelpeaks stark oder teilweise sogar komplett durch die Abfallmatrix absorbiert. Bei sehr hohen Matrixdichten liegt daher die ganze Information über eine weit außen liegende Punktquelle in zum Teil nur einer Sektormessung. Auch bei den Messungen an den Nachbarsegmenten lassen sich dann kaum noch weitere Informationen über die Punktquelle gewinnen. Bei insgesamt vier zu rekonstruierenden Parametern pro Punktquelle, ist es daher statistisch unmöglich, weit außen liegende Punktquellen durch SGS-Messungen im Standardscanmodus mit diskreten Fassrotationen zu rekonstruieren.

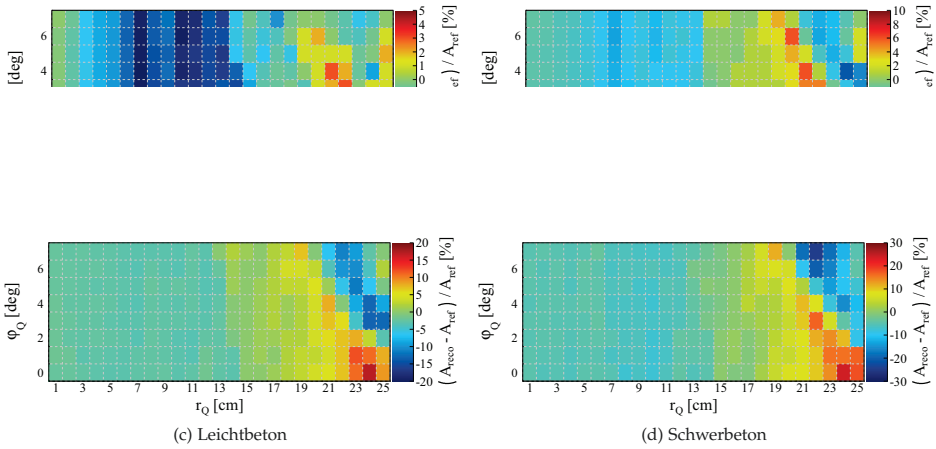


Abbildung 9.9: Aktivitätsabweichungen aus der Rekonstruktion von ^{60}Co -Punktquellen als Funktion der Referenzposition (r_Q und ϕ_Q) für alle Matrixmaterialien auf der Basis des Alternativscanmodus mit diskreten Fassrotationen.

ZUR QUANTIFIZIERUNG SYSTEMATISCHER ABWEICHUNGEN werden die Aktivitätsabweichungen aus den Rekonstruktionen von ^{60}Co -Punktquellen im vorherigen Abschnitt in Abhängigkeit ihrer bekannten Referenzposition analysiert. Die Ergebnisse dieser Studie sind in Abbildung 9.8 für den Standardscanmodus zusammengefasst. Unabhängig von der Matrixdichte sind die Aktivitätsabweichungen für Punktquellen bei Positionen mit $r_Q < 17\text{ cm}$ gering und es sind nahezu keine Systematiken festzustellen. Erst bei äußeren Positionen, vor allem in den Abfallmatrizes aus Leicht- und Schwerbeton, sind deutliche Unterschätzungen bis zu -90% zu erkennen. Bei den Abfallmatrizes aus LD-PE beziehungsweise PE sind diese Abweichungen mit bis zu -60% deutlich geringer, da die Zählraten im Spiegelpeak aufgrund der geringeren Absorption der γ -Strahlung in der Abfallmatrix deutlich größer sind. Somit ist mehr Information über die Punktquelle vorhanden. Erwartungsgemäß muss festgehalten werden, dass durch SGS-Messungen im Standardscanmodus mit diskreten Fassrotationen nicht für alle möglichen Positionen einer Punktquelle, vor allem bei hohen Matrixdichten, mit einer verlässlichen Genauigkeit der Aktivitätsrekonstruktion gerechnet werden kann.

UM DIE VERLÄSSLICHKEIT einer genauen Aktivitätsrekonstruktion auch bei Punktquellen an äußeren Positionen stets sicherzustellen, müssen mehr Sektormessungen an einem Segment durchgeführt werden. Daher werden die Aktivitätsabweichungen der ^{60}Co -Punktquellen in Abhängigkeit ihrer Referenzposition auch für den Alternativscanmodus¹¹⁴ analysiert. Die Aktivitätsabweichungen als Funktion der Referenzposition sind für die verschiedenen Matrixmaterialien in Abbildung 9.9 dargestellt. Grundsätzlich ist die Aktivitätsrekonstruktion von Punktquellen an den äußeren Positionen auch hier ungenauer, als bei innen liegenden Punktquellen. Die maximalen Abweichungen sind allerdings mit $\pm 30\%$ in der Schwerbetonmatrix deutlich geringer, als bei den Analysen im Standardscanmodus.

¹¹⁴ siehe Tabelle 6.2

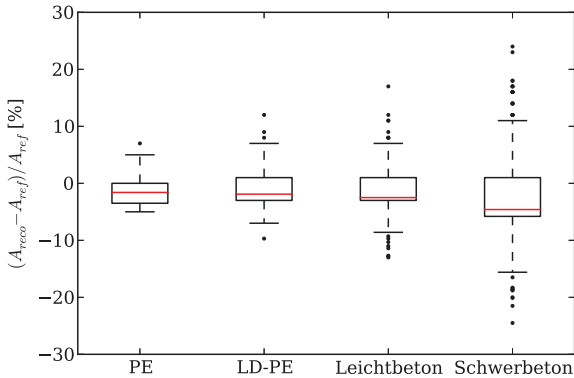


Abbildung 9.10: Box-Whisker-Diagramme der Aktivitätsabweichungsverteilungen bei der Rekonstruktion von ^{60}Co -Punktquellen in verschiedenen Matrixmaterialien auf der Basis des Alternativscanmodus. Die rote Linie ist der Median. Die Box zeigt den Abstand zwischen dem 0,25- und dem 0,75-Perzentil. Die Länge der Whiskers bezieht sich auf den 1,5-fachen Interquartilsabstand. Die Punkte zeigen die Ausreißer.

Unabhängig von der Referenzposition der Punktquelle, ist die Aktivitätsabweichung bei den verschiedenen Matrixmaterialien für Rekonstruktionen im Alternativscanmodus in Abbildung 9.10 durch Box-Whisker-Diagramme dargestellt. Als Maß für die Breite der Verteilungen werden die Enden der Whiskers herangezogen. Hier ist zu erkennen, dass die Genauigkeit der Aktivitätsrekonstruktion von Punktquellen in einer Abfallmatrix aus Schwerbeton bis auf wenige Ausnahmen sogar auf einen Bereich von nur $\pm 15\%$ eingeschränkt werden kann. Bei allen anderen Matrixdichten liegt die maximale Aktivitätsabweichung sogar stets innerhalb von $\pm 10\%$.

AUS DIESER SYSTEMATIKSTUDIE kann geschlossen werden, dass die Aktivitätsrekonstruktion von Punktquellen durch SGS-Messungen maßgeblich von der Anzahl der Sektormessungen pro Segment abhängt. Für das hier simulierte SGS-System mit diskreten Fassrotationen muss der Alternativscanmodus benutzt werden, damit eine gute Genauigkeit der Aktivitätsrekonstruktion für alle anzunehmenden Positionen einer Punktquelle und für alle zu erwartenden Matrixdichten sichergestellt werden kann. Bei noch kleineren Rotationsschrittweiten ist mit einer weiteren Verbesserung der Genauigkeit zu rechnen, die allerdings so gering ist, dass sie nicht im Verhältnis zur damit verbundenen größeren Messzeit steht. Allen folgenden Simulationsstudien liegt daher der Alternativscanmodus zugrunde.

9.6 Modellwahl, statistische Unsicherheiten und Rechenzeiten

IN DEN VORHERIGEN ABSCHNITTEN wurden die Aktivitäts- und die Positionsrekonstruktion mit dem analytischen Modell durchgeführt. Die Rekonstruktion von Punktquellen mit dem numerischen Modell lässt grundsätzlich sowohl eine bessere Genauigkeit als auch eine größere Verlässlichkeit bei einer deutlich höheren Rechenzeit erwarten. In Abbildung 9.11 sind die gemessenen und die mit dem

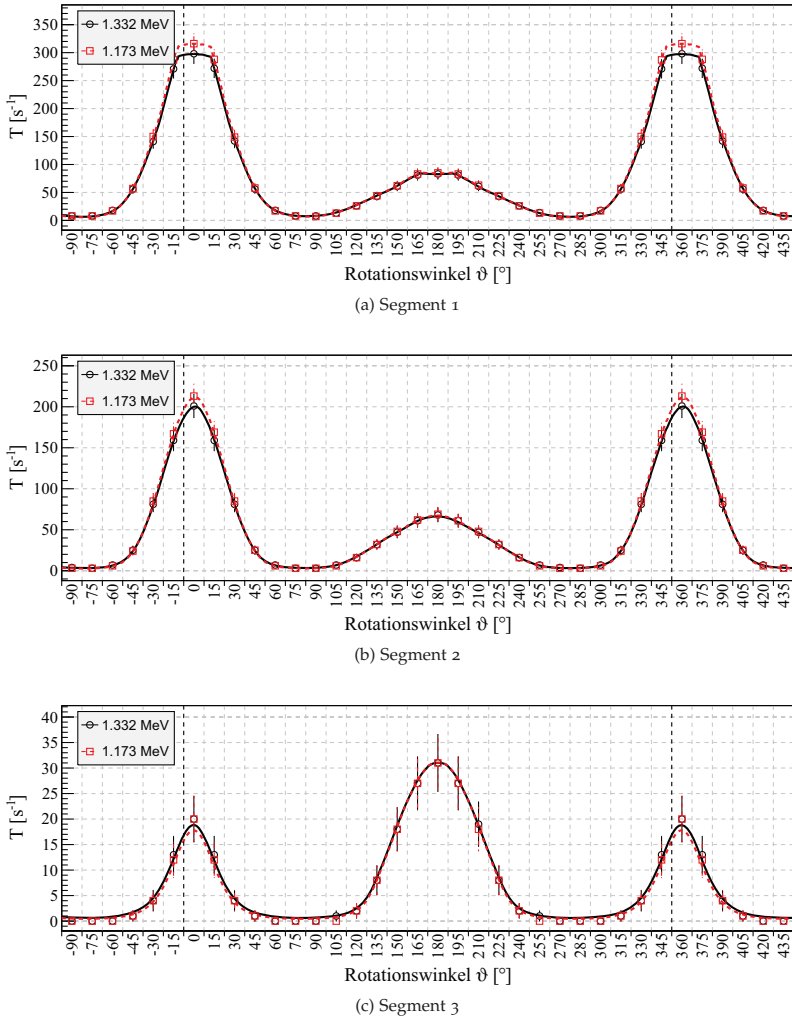


Abbildung 9.11: Simulierte (Punkte) und mit dem numerischen Modell rekonstruierte (Linien) Zählratenverteilung für eine ^{60}Co -Punktquelle in einer Matrix aus LD-PE bei $r_Q = 10\text{ cm}$, $\phi_Q = 0^\circ$ und $z_Q = 2\text{ cm}$. Es wurde der Alternationsmodus benutzt. Zur besseren Visualisierung ist die Zählratenverteilung von -15° bis -90° und von 360° bis 435° zyklisch erweitert.

numerischen Modell rekonstruierten Zählratenverteilungen bei derselben Referenzkonfiguration dargestellt, wie bereits in Abbildung 9.4 mit dem analytischen Modell gezeigt. Systematische Abweichungen, wie in der Diskussion von Abbildung 9.4 beschrieben, sind bei der Rekonstruktion mit dem numerischen Modell nicht zu beobachten. In allen drei Segmenten ist die Übereinstimmung der gemessenen mit der berechneten Zählratenverteilung sehr gut. Das wird durch die rekonstruierten Parameter, die in Tabelle 9.5 zusammengefasst sind, bestätigt. Die Position der Punktquelle konnte mit einer Genauigkeit von unter 1 mm und die Aktivität mit einer Genauigkeit von rund 0,1% bestimmt werden. Dies ist eine deutliche Verbesserung im Vergleich zu den Ergebnissen der Rekonstruktionen mit dem analytischen Modell, wie in Tabelle 9.2 zusammengefasst. Die statisti-

Scanmodus	r_Q [cm]	ϕ_Q [°]	z_Q [cm]	$\Delta A/A$ [%]	σ_{A+} [%]	σ_{A-} [%]
Alternativ	10,09	-0,0765	1,97	-0,13	1,58	1,58

schen Unsicherheiten der rekonstruierten Aktivitäten sind allerdings in beiden Modellen vergleichbar und liegen bei rund 1,5 %.

DER VERGLEICH DER GENAUIGKEIT der Aktivitätsrekonstruktion einer ^{60}Co -Punktquelle in beiden Modellen ist in Abbildung 9.12 gezeigt. Grundsätzlich ist der Median der Aktivitätsabweichungsverteilung bei Rekonstruktionen mit dem numerischen Modell mit rund -1,6 % um nur 0,8 Prozentpunkte besser als der Median bei Rekonstruktionen mit dem analytischen Modell. Die Schwankungsbreite der Aktivitätsabweichungen bei der Rekonstruktion mit dem numerischen Modell ist bis auf wenige Ausnahmen allerdings mit rund -9 % bis 4 % deutlich schmäler, als die Schwankungsbreite bei Rekonstruktionen mit dem analytischen Modell mit rund -13 % bis 9 %. Neben der Genauigkeit der Aktivitätsrekonstruktion müssen im Vergleich beider Modelle auch die statistischen Unsicherheiten betrachtet werden. In Abbildung 9.13 sind dazu die Pullverteilungen der Aktivitätsabweichungen für die Rekonstruktion mit beiden Modellen gezeigt. Bis auf wenige Ausnahmen ist zu erkennen, dass die Breite der Pullverteilungen für Rekonstruktionen mit dem numerischen Modell erwartungsgemäß im Bereich von rund $\pm 1\sigma$ um den Median liegt. Die bestimmten statistischen Unsicherheiten liegen somit in einer sinnvollen Größenordnung. Bei der Rekonstruktion mit dem analytischen Modell ist die Breite der Verteilung mit rund $\pm 3\sigma$ deutlich größer. Das weist auf eine systematische Unterschätzung der statistischen Unsicherheiten hin. Die Fehleinschätzung der statistischen Unsicherheiten ist auf die intrinsische Modellgenauigkeit des analytischen Modells zurückzuführen.

NEBEN DER VORHERIGEN DISKUSSION um die Genauigkeit und Verlässlichkeit der Rekonstruktion einer Punktquelle mit beiden Modellen, darf die Berechnungszeit nicht außer Acht gelassen werden. Alle Rekonstruktionen wurden auf einem 2,4 GHz quad-core Intel Core i7 unter dem Betriebssystem Mac OS X 10.8 durchgeführt. Die Rekonstruktion inklusive der Berechnung der statistischen Unsicherheiten aller Parameter dauert im analytischen Modell grundsätzlich weniger als 2 s. Die Rechenzeit steigt mit der Anzahl der gleichzeitig zu analysierenden Punktquellen desselben Radionuklids exponentiell an. Trotzdem ist auch dann bei Rekonstruktionen mit dem analytischen Modell mit Rechenzeiten unter 1 min zu rechnen, wie es in Abschnitt 9.8 näher analysiert wird. In Abbildung 9.14 sind die Rechenzeiten für die Rekonstruktion mit und ohne Fehlerberechnung im numerischen Modell dargestellt. Während die Rechenzeit für die Rekonstruktion ohne Fehlerberechnung stets unter 40 s und in den meisten Fällen sogar unter 20 s liegt, kann die zusätzliche Berechnung der statistischen Unsicherheiten Rechenzeiten bis zu 150 s fordern.

Tabelle 9.5: Ergebnisse der im numerischen Modell rekonstruierten Parameter einer ^{60}Co -Punktquelle in einer Matrix aus LD-PE bei $r_Q = 10$ cm, $\phi_Q = 0^\circ$ und $z_Q = 2$ cm. $\Delta A/A$ ist die Aktivitätsabweichung und $\sigma_{A\pm}$ ist die Unsicherheit der Aktivitätsabweichung.

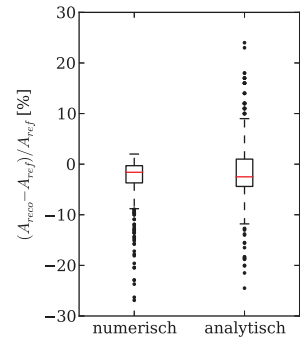


Abbildung 9.12: Box-Whisker-Diagramme der Aktivitätsabweichungsverteilungen bei der Rekonstruktion von ^{60}Co -Punktquellen in allen verschiedenen Matrixmaterialien mit dem numerischen und dem analytischen Modell. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt. Die rote Linie ist der Median. Die Box zeigt den Abstand zwischen dem 0,25- und dem 0,75-Perzentil. Die Länge der Whiskers bezieht sich auf den 1,5-fachen Interquartilsabstand. Die Punkte zeigen die Ausreißer.

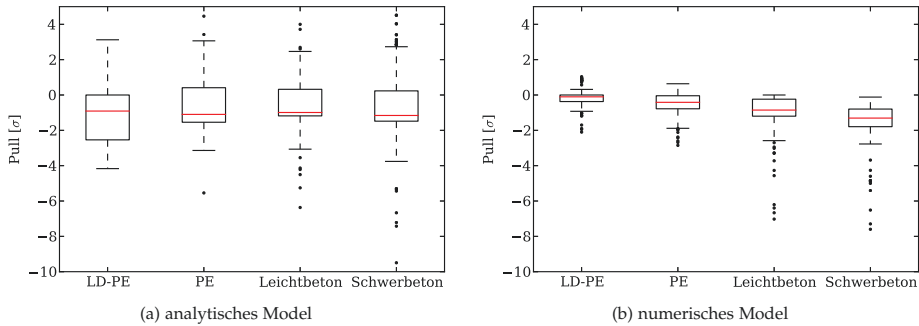


Abbildung 9.13: Box-Whisker-Diagramme der Pullverteilungen für die Aktivitätsabweichungen bei der Rekonstruktion von ^{60}Co -Punktquellen in allen Matrixmaterialien mit dem numerischen und dem analytischen Modell. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt. Die rote Linie ist der Median. Die Box zeigt den Abstand zwischen dem 0,25- und dem 0,75-Perzentil. Die Länge der Whiskers bezieht sich auf den 1,5-fachen Interquartilsabstand. Die Punkte zeigen die Ausreißer.

In den meisten Fällen liegt die gesamte Rechenzeit allerdings unter 1 min. Bei der gleichzeitigen Analyse mehrerer Punktquellen desselben Radionuklids kann dies aber auch ohne die Fehlerberechnung schnell zu Rechenzeiten jenseits von 10 min führen.

ZUSAMMENFASSEND muss festgehalten werden, dass die Aktivitätsrekonstruktion mit dem numerischen Modell nur leicht genauer, aber deutlich verlässlicher ist, als mit dem analytischen Modell. Die Rechenzeiten für die Rekonstruktion von Punktquellen mit dem numerischen Modell wiegen diese Vorteile allerdings wieder auf. In der Routinecharakterisierung sollten die Rekonstruktionen mit dem numerischen Modell daher nur in Ausnahmefällen stattfinden. Grundsätzlich muss hier allerdings festgehalten werden, dass die Verantwortung für die Auswahl der Berechnungsmodi und damit auch die Auswirkungen auf die Rechenzeiten dem Anwender obliegt. Reicht die Genauigkeit und Verlässlichkeit der Aktivitätsrekonstruktion mit dem analytischen Modell nicht aus, so wird innerhalb SGSRECOs die Möglichkeit der Steigerung der Genauigkeit und Verlässlichkeit durch die Rekonstruktion mit dem numerischen Modell gegeben. Standardmäßig

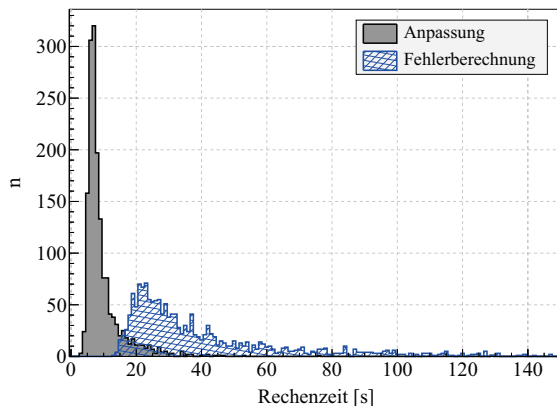


Abbildung 9.14: Häufigkeitsverteilung der Rechenzeit mit und ohne Fehlerberechnung zur Rekonstruktion einer ^{60}Co -Punktquelle mit dem numerischen Modell. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt.

werden die Rekonstruktionen in SGSreco aber mit dem analytischen Modell durchgeführt.

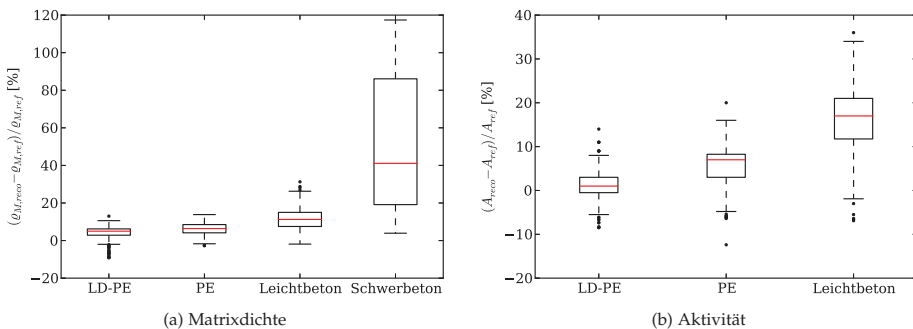
9.7 Benchmarkberechnung bei unbekannten Matrixdichten

DIE AKTIVITÄTSREKONSTRUKTION wurde bis jetzt immer unter der Voraussetzung einer bekannten Matrixdichte im Standardmodus¹¹⁵ durchgeführt. Vor allem bei Altabfällen ist diese Voraussetzung allerdings selten gegeben. In Abschnitt 7.5 wurde gezeigt, dass im Rahmen des Matrixmodus¹¹⁶ vorgesehen ist, auch eine unbekannte Matrixdichte zu rekonstruieren. Für die detaillierte Quantifizierung der Genauigkeit der Aktivitäts- und der Matrixdichtenrekonstruktion bei einer Punktquelle, wird jede der 400 simulierten Referenzzählratenverteilungen einzelner ⁶⁰Co-Punktquellen in den verschiedenen Matrixmaterialien mit dem Matrixmodus analysiert. In Abbildung 9.15 sind die Abweichungen der rekonstruierten Dichte zur Referenzdichte und die Abweichungen der rekonstruierten Aktivität zur Referenzaktivität in Box-Whisker-Diagrammen dargestellt. Grundsätzlich kann festgestellt werden, dass die Matrixdichten ρ_M bei allen Matrixmaterialien systematisch überschätzt werden. Diese Überschätzung ist durch die Systematiken des analytischen Modells zu begründen. Wird die Dichte leicht überschätzt, so wird auch der Hauptpeak einer Punktquelle im Vergleich zum selben Hauptpeak bei der Referenzdichte schmaler. Dadurch wird eine bessere Übereinstimmung zwischen den im analytischen Modell systematisch unterschätzten Zählraten an den Peakflanken erzielt. Liegen die Abweichungen der Matrixdichten bei LD-PE und PE im Median noch bei nur 5 % beziehungsweise 6,4 % und bei Leichtbeton bei nur 11,3 %, so sind die Abweichungen bei Schwerbeton im Median schon sehr signifikant bei 41,1 %. Die Variationen der Matrixdichteabweichungen liegen bei LD-PE sowie PE in einem Bereich von ungefähr –5 % bis 10 % beziehungsweise 15 %. Bei Leichtbeton sind das immerhin noch nur –5 % bis 25 %. Bei Schwerbeton hingegen kann die Matrixdichte in einem Bereich von bis zu 120 % überschätzt werden. Da die Matrixdichte bei

¹¹⁵ siehe Tabelle 7.3 Modus S

¹¹⁶ siehe Tabelle 7.3 Modus M

Abbildung 9.15: Box-Whisker-Diagramme für die Verteilung der Dichte- und Aktivitätsabweichungen bei der Rekonstruktion von Abfällen mit unbekannten Matrixdichten in Abhängigkeit der einzelnen Matrixmaterialien. Es wurde der Alternativcanmodus benutzt. Die rote Linie ist der Median. Die Box zeigt den Abstand zwischen dem 0,25- und dem 0,75-Perzentil. Die Länge der Whiskers bezieht sich auf den 1,5-fachen Interquartilsabstand. Die Punkte zeigen die Ausreißer.



den Berechnungen der Zählraten nach Gleichung (7.9) im Exponentialterm steht, ist die Aktivitätsabweichung bei einer fehleingeschätzten Matrixdichte stark verfälscht. Im Matrixmodus kann bei Schwerbeton somit keine genaue und verlässliche Rekonstruktion sichergestellt werden. Die Aktivitätsabweichungsverteilungen werden daher nur für LD-PE, PE und Leichtbeton in Abbildung 9.15 b) miteinander verglichen. Die systematische Überschätzung der Matrixdichte äußert sich erwartungsgemäß auch in einer systematischen Überschätzung der Referenzaktivitäten. Trotzdem lässt sich bei Abfallmatrizes aus LD-PE mit einer grundsätzlich nur leichten Überschätzung von rund 1 % und einer relativ geringen Schwankungsbreite der Verteilung von –5 % bis 9 % eine sehr genaue Aktivitätsrekonstruktion feststellen. Bei PE und Leichtbeton liegen die Überschätzungen schon bei ungefähr 7 % beziehungsweise 17 %. Auch die Schwankungsbreiten werden entsprechend größer. Bei Leichtbeton können die Aktivitätsabweichungen daher von rund –1 % bis zu 35 % schwanken. Im Rahmen der konventionellen Methode gibt es allerdings keinen vergleichbaren Rekonstruktionsmodus. Somit konnten Abfallfässer nur anhand der Matrixdichte aus der Wägung des Fasses charakterisiert werden, was zum Teil zu extremen Fehleinschätzungen der Matrixdichte und somit auch der rekonstruierten Aktivität führt.

9.8 Benchmarkberechnung bei Ensembles aus mehreren Punktquellen

DIE GENAUIGKEIT bei der Aktivitätsrekonstruktion für Ensembles mehrerer Punktquellen wird hier nur für ^{60}Co -Punktquellen in einer Abfallmatrix aus LD-PE untersucht, da der Einfluss anderer Matrixmaterialien auf die Rekonstruktion bereits in den vorherigen Abschnitten ausgiebig diskutiert wurde. In Abbildung 9.16 ist die summierte Zähl-

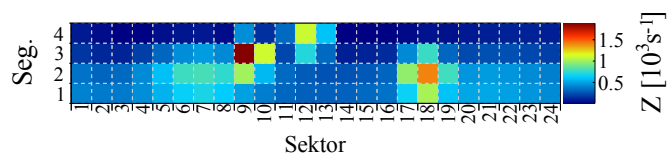
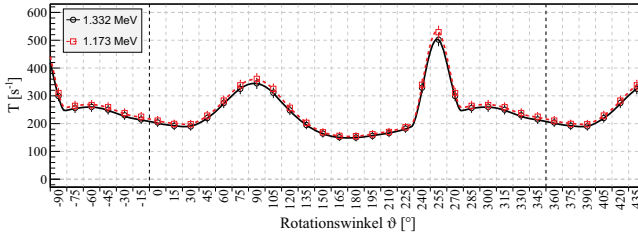
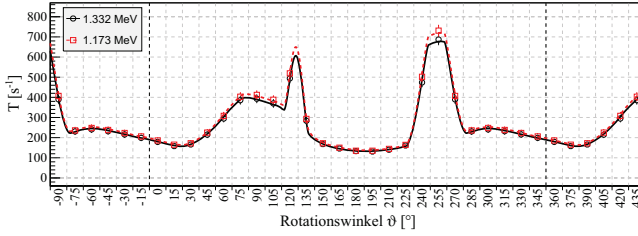


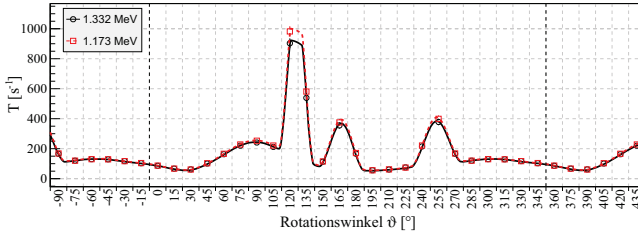
Abbildung 9.16: Zählratenverteilungen von fünf ^{60}Co -Punktquellen in einer Matrix aus LD-PE. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt.



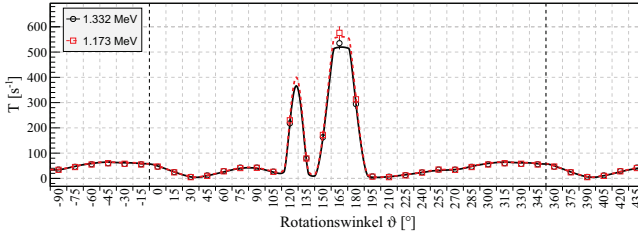
(a) Segment 1



(b) Segment 2



(c) Segment 3



(d) Segment 4

Abbildung 9.17: Simulierte (Punkte) und rekonstruierte (Linien) Zählratenverteilung für fünf ^{60}Co -Punktquellen in einer Matrix aus LD-PE. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt. Zur besseren Visualisierung ist die Zählratenverteilung von -15° bis -90° und von 360° bis 435° zyklisch erweitert.

mit maximal 1 cm Abstand zur Referenzposition rekonstruiert werden konnte. Die Gesamtaktivität konnte mit einer Genauigkeit von $3,32\% \pm 2,3\%$ bestimmt werden.

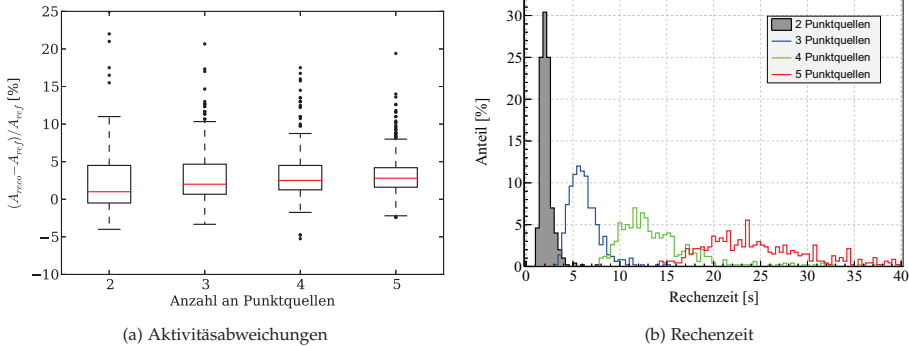
FÜR DIE DETAILLIERTE QUANTIFIZIERUNG der Genauigkeit der Aktivitäts- und Positionsrekonstruktion für Ensembles mehrerer Punktquellen wurden jeweils 500 Zählratenverteilungen von Ensembles mit insgesamt zwei bis fünf Punktquellen desselben Radionuklids mit jeweils identischen Aktivitäten berechnet. In Abbildung 9.18 a) sind

Tabelle 9.6: Werte der rekonstruierten Parameter von fünf ^{60}Co -Punktquellen in einer Matrix aus LD-PE. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt. $\Delta A/A$ ist die Aktivitätsabweichung und $\sigma_{A\pm}$ ist die Unsicherheit der Aktivitätsabweichung.

Quelle		r_Q [cm]	ϕ_Q [°]	z_Q [cm]	$\Delta A/A$ [%]	σ_{A+} [%]	σ_{A-} [%]
1	Referenz	17	253	6	2,42	2,40	2,40
	SGSreco	16,5	253	6,01			
2	Referenz	18	167	14	0,56	2,11	2,08
	SGSreco	17,7	167	13,89			
3	Referenz	8	93	6	−0,53	3,76	3,79
	SGSreco	7,70	93,4	6,08			
4	Referenz	3	327	2	−2,15	3,13	3,16
	SGSreco	2,94	329	1,91			
5	Referenz	24	126	10	0,63	2,20	2,18
	SGSreco	23,0	126	10,0			
Summe		SGSreco			3,32	2,30	2,30

die Verteilungen für die Abweichung der Gesamtaktivitäten von der Referenzgesamtaktivität dargestellt. Für die spätere Deklaration der radionuklidspezifischen Aktivitäten eines Abfallgebindes ist letztendlich nur die Gesamtaktivität relevant. Bis auf wenige Ausnahmen ist festzustellen, dass die Genauigkeit der Aktivitätsrekonstruktion bei zwei Punktquellen im Fassabschnitt zwischen −5 % und 10 % schwankt. Die Schwankungsbreite wird bei größeren Ensembles an Punktquellen sogar leicht schmaler, da hier Abweichungen bei der Rekonstruktion einer einzelnen Punktquelle durch die Rekonstruktion der verbleibenden Punktquellen eher abgefangen werden können. Der Median der Abweichungsverteilungen der Gesamtaktivitäten liegt für alle Ensembles zwischen 1 % und 3,5 %. Diese Analyse zeigt daher, dass die Gesamtaktivität fast unabhängig von der Größe des Ensembles aus Punktquellen nur unwesentlich schlechter bestimmt werden kann, als die Aktivität einer einzelnen Punktquelle. Die Rechenzeiten für die Rekonstruktion inklusive Fehlerrechnung, die für die gleichzeitige Analyse mehrerer Punktquellen benötigt wird, sind in Abbildung 9.18 dargestellt. Erwartungsgemäß steigt die Rechenzeit mit der Anzahl der gleichzeitig zu analysierenden Punktquellen an.

Abbildung 9.18: Box-Whisker-Diagramme für die Aktivitätsabweichungen von Ensembles aus ^{60}Co -Punktquellen in einer LD-PE Matrix in (a) und die benötigten Rechenzeiten inklusive der Fehleranalyse in (b). Es wurde der Alternativscanmodus benutzt. Bei den Box-Whisker-Diagramme ist die rote Linie der Median. Die Box zeigt den Abstand zwischen dem 0,25 – und dem 0,75 –Perzentil. Die Länge der Whiskers bezieht sich auf den 1,5 –fachen Interquartilsabstand. Die Punkte zeigen die Ausreißer.



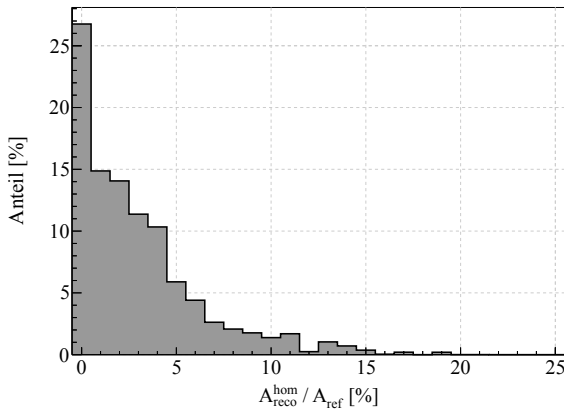


Abbildung 9.19: Anteil der rekonstruierten Aktivität einer homogenen ^{60}Co -Verteilung an der rekonstruierten Gesamtaktivität für Ensembles aus zwei bis fünf ^{60}Co -Punktquellen in einer Matrix aus LD-PE. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt.

Allerdings sind auch bei Ensembles aus fünf Punktquellen stets nicht mehr als 40 s und in den meisten Fällen sogar nicht mehr als 30 s an Rechenzeit nötig. Somit kann SGSreco bei der Routinecharakterisierung von Abfallfässern in den hier festgelegten Einstellungen sinnvoll eingesetzt werden.

IM STANDARDMODUS¹¹⁷ der Rekonstruktion mit SGSreco wird neben den Parametern der Punktquelle auch die mittlere Zählrate eines homogenen Radionuklidinventars rekonstruiert. Bei der Rekonstruktion der Zählratenverteilung in diesem Abschnitt muss diese mittlere Zählrate zu 0 cps rekonstruiert werden, weil kein anteilig homogenes Radionuklidinventar vorliegt. In Abbildung 9.19 ist der Anteil der fälschlicherweise rekonstruierten homogenen Aktivität an der rekonstruierten Gesamtaktivität für alle analysierten Ensembles gezeigt. In rund 27 % der Fälle ist die homogene Aktivität erwartungsgemäß zu 0 Bq rekonstruiert werden. Für weniger als 5 % der Fälle liegt

¹¹⁷ siehe Tabelle 7.3 Modus S

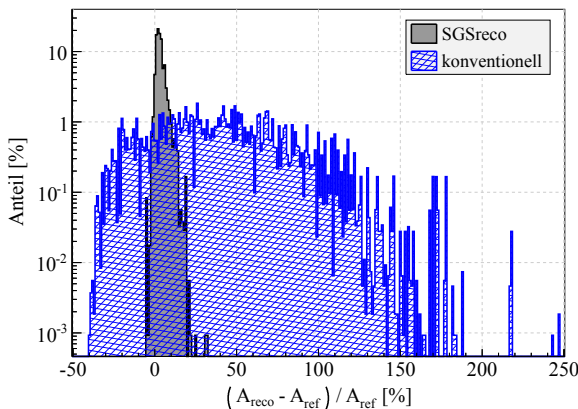


Abbildung 9.20: Abweichungsverteilungen der rekonstruierten Aktivitäten von den Referenzaktivitäten im Vergleich zwischen SGSreco und der konventionellen Methode bei der Rekonstruktion von Ensembles aus zwei bis fünf ^{60}Co -Punktquellen in einer Matrix aus LD-PE. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt.

der Anteil oberhalb von 10 %, aber niemals mehr als 20 %. In der Regel beträgt er aber nicht mehr als 5 %. In der Berechnung der Gesamtaktivitäten aller Rekonstruktionen in diesem Kapitel wird die Aktivitätskomponente eines fälschlicherweise rekonstruierten Radionuklidinventars selbstverständlich berücksichtigt.

IM RAHMEN DIESER STUDIE wurde gezeigt, dass die Rekonstruktion der Gesamtaktivitäten von Ensembles mehrerer Punktquellen durch SGSreco sehr genau ist. In Abbildung 9.20 werden die Aktivitätsabweichungsverteilungen aller Ensembles aus der Rekonstruktion mit SGSreco und der konventionellen Methode miteinander verglichen. Wie in den vorherigen Abschnitten zu erwarten war, liegen die Aktivitätsabweichungen aus der Rekonstruktion mit SGSreco zwischen circa –5 % und 25 % mit einem Median im Bereich von 2 % bis 3 %. Die Aktivitätsabweichungen aus der Rekonstruktion mit der konventionellen Methode sind hingegen zwischen fast –50 % und 190 % gleichverteilt. Bei wenigen Ausnahmen ist sogar eine Überschätzung bis zu 250 % festzustellen. Mit einer Chance von nur rund 22 % wird die Gesamtaktivität mit der konventionellen Methode im selben Bereich wie durch SGSreco rekonstruiert. Somit ist auch bei Ensembles mehrerer Punktquellen nicht mit einer sinnvollen Aktivitätsrekonstruktion durch die konventionelle Methode im Vergleich zu SGSreco zu rechnen.

9.9 Evaluation eines Gütekriteriums

DIE AUTOMATISIERTE KONTROLLE der Güte einer Rekonstruktion ist aufgrund der Vielzahl an Einflüssen sehr schwierig. Es ist jedoch möglich zumindest ein einfaches Kriterium festzulegen, bei dem eine Rekonstruktion eindeutig zu falschen Ergebnissen führt. Dieses Kriterium kann vom Wert der log-likelihood-Funktion bei optimalen Parametern $\log(\mathcal{L}_{min})$ abgeleitet werden. Aus dem absoluten Wert kann zunächst keine direkte Aussage getroffen werden. Jedoch kann der $\log(\mathcal{L}_{min})$ -Wert einer Rekonstruktion mit der Verteilung der $\log(\mathcal{L}_{min})$ -Werte aus dieser Simulationsstudie verglichen werden. In Abbildung 9.21 sind die $\log(\mathcal{L}_{min})$ -Werte für die Rekonstruktion der Ensembles von zwei bis zu fünf Punktquellen in einer Abfallmatrix aus LD-PE, wie im letzten Abschnitt analysiert, dargestellt. Die Spannweite dieser Verteilung geht von $\log(\mathcal{L}_{min})$ -Werten um 200 bis zu $\log(\mathcal{L}_{min})$ -Werten um 800 bis 1000 aus. Hierbei muss beachtet werden, dass diese Verteilung im Rahmen von Analysen mehrerer Punktquellen in vier Segmenten evaluiert wurde. Besteht ein Fassabschnitt aus mehr beziehungsweise weniger Segmenten oder werden mehr als fünf Punktquellen gleichzeitig analysiert, ist mit einer Verschiebung der Verteilung zu rechnen. Zusätzlich darf nicht vernachlässigt werden, dass auch die Rekonstruktion mit SGSreco auf einer Idealisierung des Radionuklidinventars und der Abfallmatrix beruht. Weicht das reale Radionuklidinventar oder die Verteilung der Abfallmatrix von diesen Idealisierungen ab, sind ohnehin systematische Abweichungen

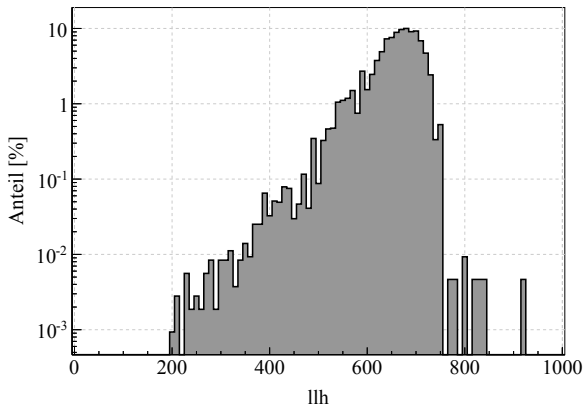


Abbildung 9.21: Häufigkeitsverteilung der $\log(\mathcal{L}_{\min})$ -Werte (llh) für die analysierten Ensembles mehrerer ^{60}Co -Punktquellen in einer Matrix aus LD-PE. Es wurden vier Segmente berücksichtigt und der Alternativscanmodus benutzt.

in der Rekonstruktion zu erwarten. Das würde zu deutlich höheren Werten von $\log(\mathcal{L}_{\min})$ führen. Die Quantifizierung all dieser Einflüsse ist nicht möglich und somit kann kein hartes Kriterium für die Güte einer Rekonstruktion definiert werden. Gemäß Abbildung 9.21 kann allerdings grob festgehalten werden, dass $\log(\mathcal{L}_{\min})$ -Werte deutlich oberhalb von 1000 auf eine eher schlechte Rekonstruktion hinweisen. In diesen Fällen sollte eine optische Überprüfung der durch SGS-reco berechneten Zählratenverteilungen und den Messergebnissen durchgeführt werden. Ist die Übereinstimmung zweifelhaft, kann die Anpassung wiederholt werden. Hierbei können unter Umständen bessere Startwerte für die $\log(\mathcal{L})$ -Anpassung gefunden und somit eine bessere Rekonstruktion erreicht werden. Ist keine bessere Rekonstruktion zu erwarten, muss das radionuklidspezifische Aktivitätsinventar in einem Fassabschnitt unter der konventionellen Annahme einer homogenen Abfallmatrix- und Radionuklidverteilung gemäß Kapitel 8 bestimmt werden oder es müssen bildgebende Verfahren, wie die TCT und ECT, benutzt werden.

9.10 Systematikstudie für ausgedehnte Quellen

BEI ABWEICHUNGEN von der Idealisierung des Radionuklidinventars durch SGSreco entstehen systematische Abweichungen in der Aktivitätsrekonstruktion. Hier werden diese systematischen Abweichungen der Aktivitätsrekonstruktion im Falle von ausgedehnten Quellen quantifiziert. Dazu werden die in Abschnitt 9.2 beschriebenen Simulationssets mit unterschiedlich ausgedehnten sphärischen ^{60}Co -Quellen an verschiedenen Referenzpositionen in allen Matrixmaterialien analysiert. In den Abbildungen 9.22 und 9.23 sind exemplarisch die simulierten und rekonstruierten Zählratenverteilungen einer sphärisch ausgedehnten Quelle mit einem Radius von 2 cm beziehungsweise 5 cm bei $r_Q = 10$ cm und $\phi_Q = 0^\circ$ dargestellt. Der Hauptpeak wird in beiden Zählratenverteilungen systematisch stärker

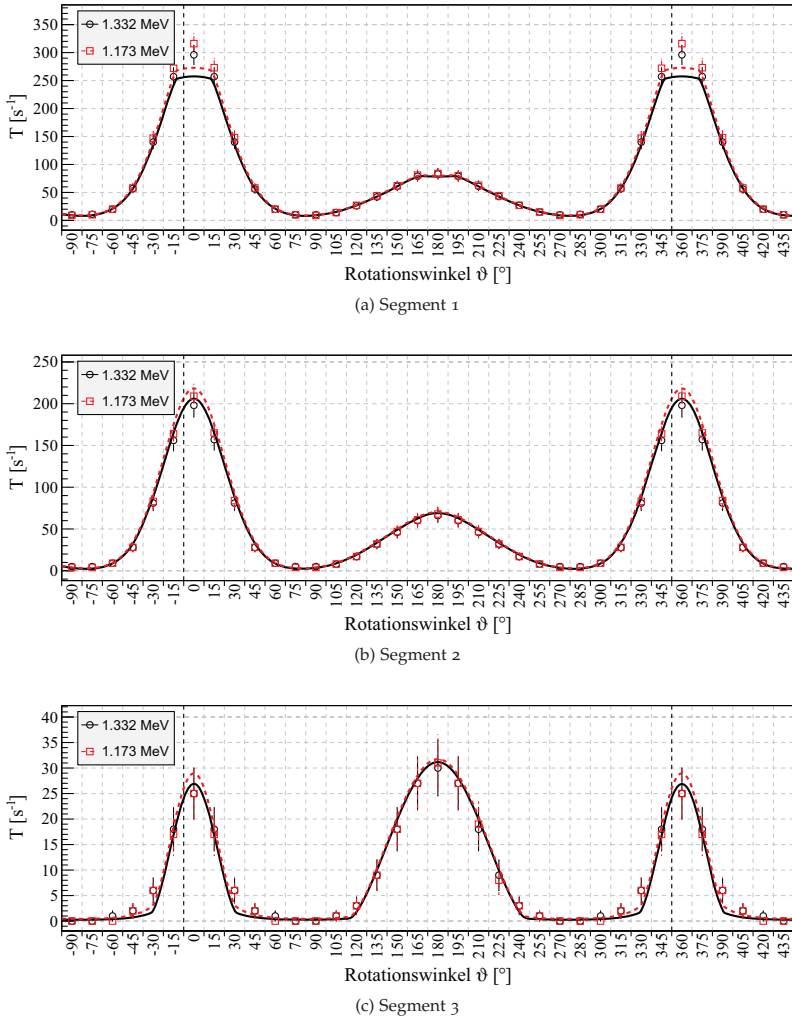
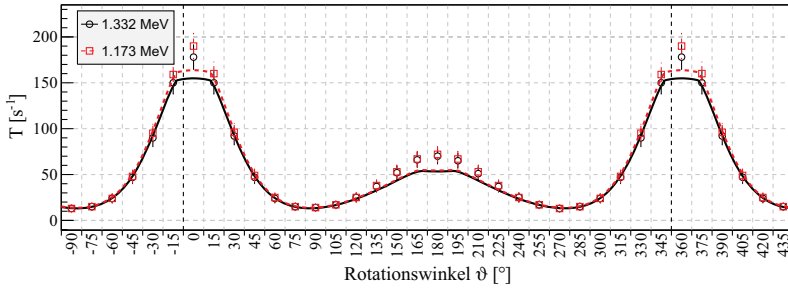
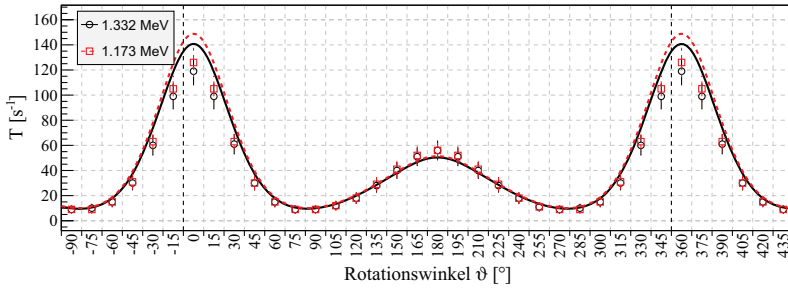


Abbildung 9.22: Simulierte (Punkte) und rekonstruierte (Linien) Zählratenverteilung für eine sphärisch ausgedehnte ^{60}Co -Quelle in einer Matrix aus LD-PE bei $r_Q = 10\text{ cm}$, $\phi_Q = 0^\circ$ und $z_Q = 2\text{ cm}$ mit einem Radius von 2 cm . Es wurde der Alternationsmodus benutzt. Zur besseren Visualisierung ist die Zählratenverteilung von -15° bis -90° und von 360° bis 435° zyklisch erweitert.

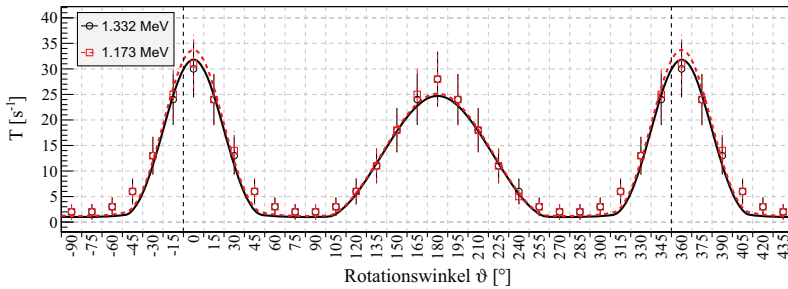
unterschätzt, als ohnehin bei einer Punktquelle, wie es in Abschnitt 9.4 erläutert wurde. Bei einem Querradius von 2 cm ist sonst eine sehr gute Übereinstimmung zwischen der simulierten und der rekonstruierten Zählratenverteilung festzustellen. Bei einem Querradius von 5 cm ist in allen drei Segmenten eine systematische Unterschätzung des Spiegelpicks zu erkennen. Der Hauptpeak hingegen wird im zweiten Segment systematisch überschätzt und im dritten Segment zumindest an den äußeren Flanken systematisch unterschätzt. Diese Diskrepanzen zwischen der Messung und der Rekonstruktion lassen auch größere Diskrepanzen in der Aktivitätsrekonstruktion erwarten. Die radiale Position der Quelle konnte für die 2 cm ausgedehnte Quelle auf ungefähr $0,49\text{ cm}$ und für die 5 cm ausgedehnte Quelle auf immerhin $1,5\text{ cm}$ genau bestimmt werden. In beiden Fällen wurde die



(a) Segment 1



(b) Segment 2



(c) Segment 3

radiale Position unterschätzt. Die Aktivitätsabweichungen betragen rund -9% beziehungsweise -41% und die $\log(\mathcal{L}_{\min})$ -Werte liegen bei 387 beziehungsweise 464, was im Rahmen der Gütebewertung, wie im vorherigen Abschnitt vorgestellt, nicht auffällig ist.

DIE AKTIVITÄTSABWEICHUNGEN als Funktion des Matrixmaterials und der Quellposition sowie -radius, sind in Abbildung 9.24 zusammengefasst. Bei Querradien bis zu 2 cm sind nahezu keine zusätzlichen systematischen Abweichungen durch die Ausdehnung der Quelle bei der Aktivitätsrekonstruktion in allen Abfallmatrizes festzustellen. Kleinere Ausdehnungen von Quellen führen demnach nicht zu einer signifikanten systematischen Abweichung der Aktivitätsrekonstruktion. Erst bei größeren Radien der sphärischen Quelle wird eine systematische Unterschätzung der Aktivität festgestellt. Bei Quel-

Abbildung 9.23: Simulierte (Punkte) und rekonstruierte (Linien) Zählratenverteilung für eine sphärisch ausgedehnte ^{60}Co -Quelle in einer Matrix aus LD-PE bei $r_Q = 10\text{ cm}$, $\phi_Q = 0^\circ$ und $z_Q = 2\text{ cm}$ mit einem Radius von 5 cm. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt. Zur besseren Visualisierung ist die Zählratenverteilung von -15° bis -90° und von 360° bis 435° zyklisch erweitert.

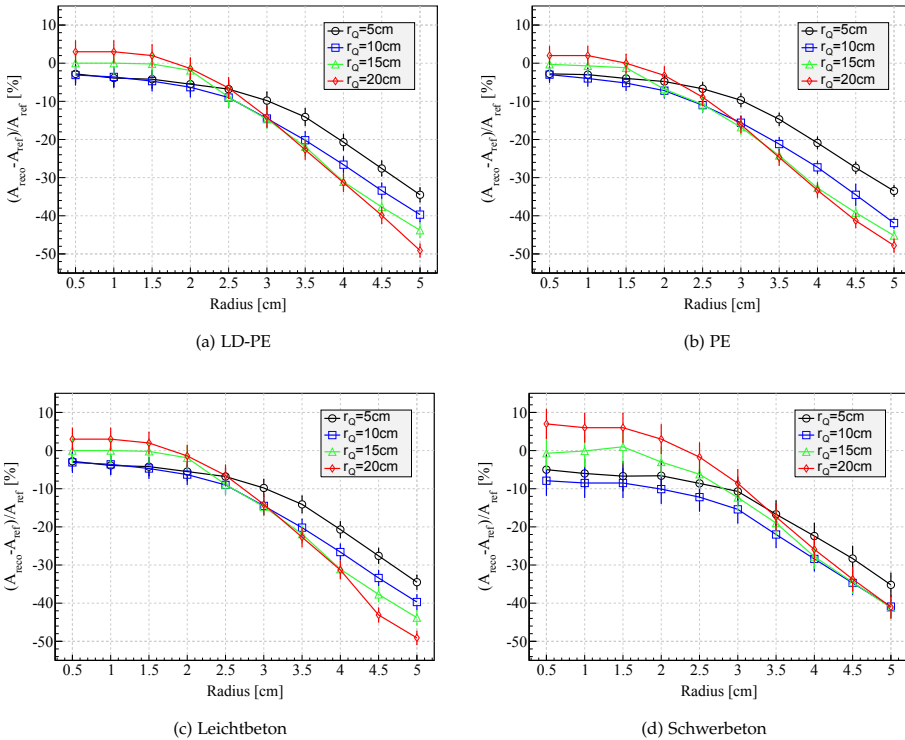


Abbildung 9.24: Abweichungen der rekonstruierten Aktivitäten von den Referenzaktivitäten für sphärisch ausgedehnte ^{60}Co -Quellen mit verschiedenen Radien in den unterschiedlichen Matrixmaterialien. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt.

len mit einem Radius bis 5 cm kann die systematische Unterschätzung circa 40 % bis 50 % betragen. In diesen Fällen gibt es im Vergleich der gemessenen mit den berechneten Zählratenverteilungen allerdings optisch leicht erkennbare Hinweise auf diese Abweichung von der Idealisierung des Radionuklidinventars. Es muss dann eine mögliche systematische Unterschätzung von bis zu 50 % in der Fehlerangabe berücksichtigt werden.

DIE SYSTEMATISCHEN ABWEICHUNGEN in der Aktivitätsrekonstruktion bei anderen Quellgeometrien, wie beispielsweise Stäbe oder Zylinder, müssen, falls notwendig, durch eine Simulationsstudie quantifiziert werden. Aufgrund der Vielzahl der möglichen Quellgeometrien und der Ausrichtung dieser Quellen im Abfallfass ist eine Quantifizierung der systematischen Abweichung im Vorhinein nicht zielführend beziehungsweise nicht möglich.

9.11 Maximal nicht-detektierbare Aktivitäten

IN DIESER STUDIE werden die zu erwartenden MNDAs für Punktquellen und homogene Radionuklidinventare nach Abschnitt 7.7 für

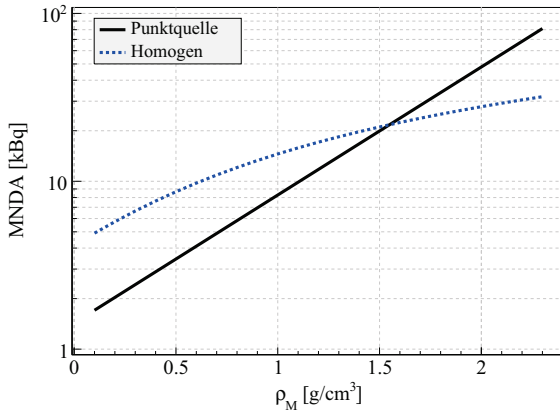


Abbildung 9.25: Maximal nicht-detectierbaren Aktivitäten für eine ^{60}Co -Punktquelle und ein homogenes ^{60}Co -Inventar als Funktion der Matrixdichte bei einer Höhe des Fassabschnitts von 16 cm.

verschiedene Matrixdichten miteinander verglichen. Dieser Vergleich wird für ^{60}Co in einem Fassabschnitt mit einer Höhe von 16 cm, wie er in dieser Simulationsstudie berücksichtigt wurde, im Alternativscanmodus¹¹⁸ durchgeführt. Die Messzeit für ein Sektorspektrum beträgt 15 s, wie in Abschnitt 6.2 beschrieben. Die Massenschwächungskoeffizienten wurden auf der Grundlage der Massenschwächungskoeffizienten für PE, die mit der jeweiligen Matrixdichte skaliert wurden, bestimmt. Bei den Berechnungen der MNDAs wurde angenommen, dass keine γ -Strahlung aus dem Fass detektiert werden konnte. Die einzelnen Sektorspektren sind somit leer und es reicht bereits ein Zählereignis für den Nachweis der Quelle aus. In Abbildung 9.25 ist die MNDa als Funktion der Matrixdichte für eine ^{60}Co -Punktquelle und eine homogene ^{60}Co -Verteilung dargestellt. Die MNDa für eine ^{60}Co -Punktquelle ist bis zu einer Matrixdichte von $1,6 \text{ g cm}^{-3}$ geringer, als für eine homogene ^{60}Co -Verteilung. Absolut liegt sie für eine ^{60}Co -Punktquelle in diesem Dichtebereich zwischen circa 2 kBq und 25 kBq. Bei Matrixdichten bis $2,3 \text{ g cm}^{-3}$ liegt die MNDa für eine ^{60}Co -Punktquelle dann sogar bei fast 80 kBq. Für eine homogene ^{60}Co -Verteilung sind es in diesem Bereich nur rund 35 kBq. Generell nimmt die MNDa für eine ^{60}Co -Punktquelle stärker mit Matrixdichte zu, als die vergleichbaren MNDa für ein homogenes ^{60}Co -Inventar. Dies ist auch zu erwarten, da der Nachweis von homogenen Radionuklidinventaren im Wesentlichen durch die äußeren Fassbereiche gegeben ist¹¹⁹. Da sich die Punktquelle aber stets im Zentrum eines Segments des Abfallfasses befindet, muss sich die MNDa entsprechend einer exponentiellen Steigung mit der Dichte ändern, wie es in Abbildung 9.25 deutlich zu erkennen ist.

¹¹⁸ siehe Tabelle 6.2

¹¹⁹ siehe Abschnitt 8.1.2 gezeigt

10

Rekonstruktion heterogener Radionuklidinventare - Messstudie

INHALT:

10.1	Testfassabschnitt und Prüfstrahler	140
10.2	Rekonstruktion von einzelnen Quellen	142
10.3	Vergleiche zwischen Standard- und Alternativscanmodus	144
10.4	Rekonstruktion von Ensembles zweier Quellen	145
10.5	Rekonstruktion von abgeschirmten Quellen	147
10.6	Anwendung bei konditionierten Abfallfässern	150

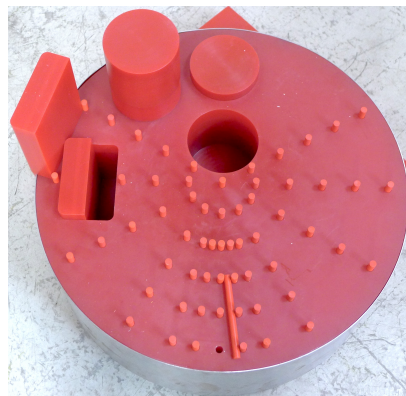
10.1 Testfassabschnitt und Prüfstrahler

ZUR EXPERIMENTELLEN VALIDIERUNG von SGSreco wurde ein Testfassabschnitt angefertigt, in den Quellen an verschiedenen Positionen eingebracht werden können. In Abbildung 10.1 sind eine Front- und Aufsicht des Testfassabschnitts gezeigt. Der Testfassabschnitt hat eine Höhe von 20 cm, einen Durchmesser von 56 cm und besteht aus Polyvinylchlorid (PVC) mit einer Dichte von $1,42 \text{ g cm}^{-3}$. Der Testfassabschnitt ist mit einer 1,5 mm dicken Stahlwand der Dichte $7,82 \text{ g cm}^{-3}$ ummantelt, ähnlich der Stahlumwandung von Abfallfässern. Verschiedenste Bohrungen in den Testfassabschnitt erlauben das Einbringen von punktförmigen Prüfstrahlern. Die Bohrungen befinden sich in 5 cm-Abständen an radialen Positionen von 0 cm bis 25 cm bei verschiedenen Winkelpositionen von 0° , $\pm 7,5^\circ$, $\pm 15^\circ$, $\pm 30^\circ$, $\pm 60^\circ$, $\pm 90^\circ$ und $\pm 120^\circ$. In der Nähe des Fasszentrums bei $r_Q = 5 \text{ cm}$ musste aus Platzgründen auf die Bohrungen bei den Winkelpositionen $\pm 7,5^\circ$ und $\pm 15^\circ$ verzichtet werden. Jede Bohrung ist 10 cm tief und endet somit auf halber Höhe des Testfassabschnitts. Die Prüfstrahler können so in das Zentrum des Testfassabschnitts eingebracht werden. Neben den Bohrungen für punktförmige Prüfstrahler, wurden auch Bohrungen bei einer Winkelposition von 180° und bei radialen Positionen von 7,5 cm (Loch 1) und bei 20 cm (Loch 2) mit einem Durchmesser von 10 cm in den Testfassabschnitt eingebracht. Loch 1 und 2 bieten die Möglichkeit Prüfstrahler in Abschirmbehältern in die Matrix einzubringen, wie es zum Teil bei industriellen Abfällen der Fall ist. Neben diesen Bohrung ist eine weitere quaderförmige Bohrung bei 90° in das Testfassabschnitt eingebracht. In diese Bohrung können absorbierende Strukturteile, wie beispielsweise Bleisteine, eingebracht werden. Für jede der Bohrungen wurden Stopfen angefertigt, die die jeweiligen Löcher vollständig verschließen und somit die Homogenität der Matrix sicher stellen.

Abbildung 10.1: Testfassabschnitt für die experimentelle Validierung von SGSreco. Der rote Matrix besteht aus PVC mit einer Dichte von $1,42 \text{ g cm}^{-3}$. Die Ummantelung besteht aus Stahl mit einer Dicke von 1,5 mm und einer Dichte von $7,82 \text{ g cm}^{-3}$. In die verschiedenen Bohrung können Prüfstrahler beziehungsweise abschirmende Körper eingebracht werden. Jede Bohrung kann mit dafür angefertigten Stopfen vollständig verschlossen werden.



(a) Frontansicht



(b) Aufsicht

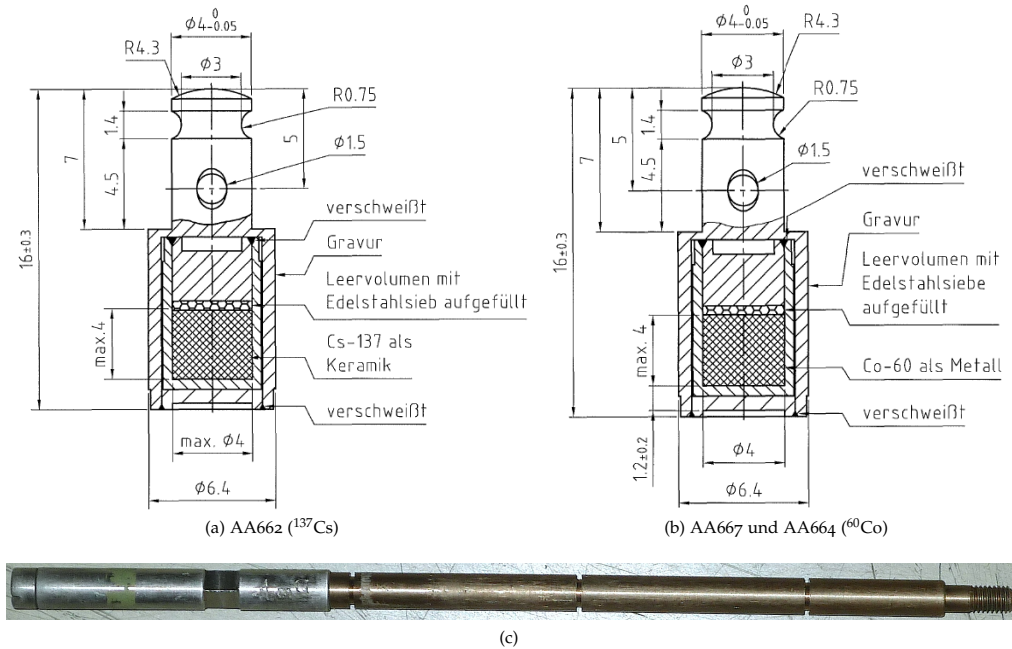


Abbildung 10.2: Technische Zeichnungen und Fotos der Referenzprüfstrahler für die experimentelle Validierung von SGsreco mit einem Testfassabschnitt. Das Quellgehäuse ist durch ein Drehgewinde an einem Stab befestigt.

¹²⁰ www.ezag.de

ALS REFERENZQUELLEN werden Industriequellen benutzt, die durch Drehgewinde im Quellgehäuse an circa 10 cm lange Stäbe montiert sind. Die technischen Zeichnungen der Quellen von der Firma Eckert & Ziegler Strahlen- und Medizintechnik AG¹²⁰ sind in Abbildung 10.2 a) und b) dargestellt. Ein Foto einer dieser an einen Stab montierten Quellen ist in Abbildung 10.2 c) gezeigt. Der Außendurchmesser des Quellgehäuses beträgt circa 6,4 mm. Das radioaktive Material befindet sich ca. 2 mm vom Boden des Quellgehäuses entfernt. Es ist in kleinen Pillen mit einem Durchmesser von maximal 4 mm und einer Höhe von nicht mehr als 2 mm bis 4 mm verteilt. Die Höhe hängt dabei von der Aktivität der Quelle ab. Bei einem Durchmesser des Testfassabschnitts von 56 cm und einem Abstand des Detektionssystems zum Fasszentrum von 63 cm kann die Quelle daher als punktförmig angenommen werden. Für die Messungen wurden vier unterschiedliche Prüfstrahler der Radionuklide ⁶⁰Co, ¹³⁷Cs und ¹⁵²Eu verwendet. Deren Aktivitäten und Bezeichnungen sind in Tabelle 10.1 zusammengefasst. Die Aktivitäten der Quellen zum Zeitpunkt der Messung wurden auf Grundlage der Aktivitätsangabe des Herstellers durch die jeweiligen Halbwertszeiten der Nuklide berechnet. Die Unsicherheiten der Aktivitäten wurden vom Hersteller zu $\pm 10\%$ angegeben.

Bezeichnung	Nuklid	A [MBq]
AA667	⁶⁰ Co	11,43
AA664	⁶⁰ Co	1,143
AA662	¹³⁷ Cs	20,11
WW653	¹⁵² Eu	97,57

Tabelle 10.1: Bezeichnungen und Aktivitäten der benutzten Referenzquellen am Datum der Messungen.

DAS SEGMENTIERTE γ -SCAN SYSTEM wurde so eingestellt, dass insgesamt vier Segmente vermessen werden. Die Quellen befinden sich im zweiten Segment. Es werden demnach ein Segment unter der Quelle

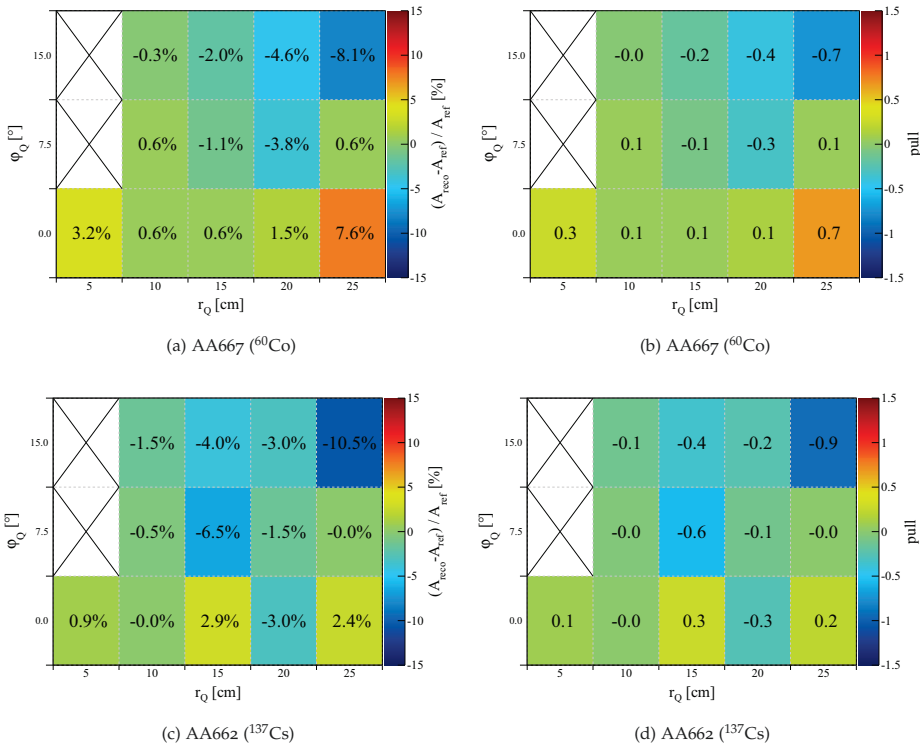
und zwei drüber vermessen. Bei einer SGS-Messung wird das Abfallfass, wie in Abschnitt 6.2 erläutert, kontinuierlich rotiert und nicht, wie bei der Simulationsstudie in Kapitel 9 beschrieben, in diskreten Winkelschritten rotiert. Der Vorteil dieser Messart liegt in der möglichen Verbesserung der Rekonstruktion von außen liegenden Quellen im Standardscanmodus. Außen liegende Quellen, die im Standardscanmodus nie im Sichtfeld des Detektors gewesen wären, werden hier zumindest für einen kleinen Teil der Messzeit einer Sektormessung durch das Sichtfeld rotiert und können somit besser nachgewiesen werden. Die Messzeit für eine Anordnung beträgt bei einer Sektormessung von 15 s daher 12 min beziehungsweise 24 min für den Standard- und den Alternativscanmodus¹²¹. Wenn nicht anders erwähnt, wird bei den folgenden Studien der Standardscanmodus verwendet.

¹²¹ siehe Tabelle 6.2

10.2 Rekonstruktion von einzelnen Quellen

IN DER ERSTEN MESSKAMPAGNE werden SGS-Messungen mit den Referenzquellen AA667 und AA662 der Schlüsselnuklide ^{60}Co und ^{137}Cs an jeweils 13 unabhängigen Referenzpositionen bei 0° , $7,5^\circ$ und 15° durchgeführt. Diese Studie ist vergleichbar zur Simulationsstudie in

Abbildung 10.3: Aktivitätsabweichungen und Pulls aus der Rekonstruktion von Quellen als Funktion der Referenzposition (r_Q und ϕ_Q) im Testfassabschnitt. Es wurde der Standardscanmodus mit einer kontinuierlichen Fassrotation benutzt.



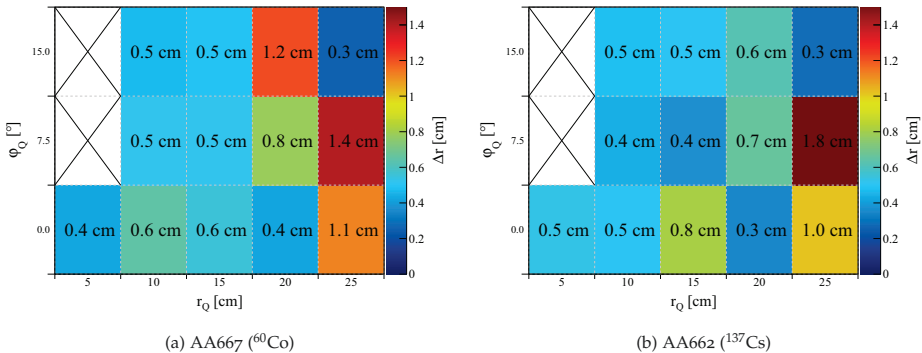
den Abschnitten 9.4 und 9.5. Die Rekonstruktion einer Quelle wird im Standardmodus¹²² vorgenommen. Die Aktivitätsabweichungs- und Pullverteilungen dieser Studie sind als Funktion der Referenzposition in Abbildung 10.3 dargestellt. Mit einer maximalen Abweichung von $-8,1\%$ beziehungsweise $-10,5\%$ für die äußeren Positionen der Schlüsselnuklide ^{60}Co und ^{137}Cs , zeigt sich für alle Quellpositionen eine sehr genaue Aktivitätsrekonstruktion. Bei den innen liegenden Quellen ist die Genauigkeit sogar meist besser als $\pm 4\%$. Durch die kontinuierliche Rotation sind die Aktivitätsabweichungen bei den äußeren Referenzpositionen somit deutlich geringer, als aus der Simulationsstudie in Abschnitt 9.5 zu erwarten gewesen wäre. Die Unsicherheiten der Aktivitätsabweichung setzen sich aus den statistischen Unsicherheiten der Rekonstruktion und den systematischen Unsicherheiten aus der Effizienzkalibration des Detektionssystems beziehungsweise aus der Angabe der Quellaktivität zusammen. In den Pullverteilungen ist zu erkennen, dass alle rekonstruierten Aktivitäten, selbst für außen liegende Quellen, im Bereich einer Standardabweichung mit der Erwartung verträglich sind. Dabei ist allerdings anzumerken, dass die systematischen Unsicherheiten der Quellaktivitäten mit $\pm 10\%$ deutlich größer sind, als die Unsicherheiten aus der Rekonstruktion und der Effizienzkalibration. Diese liegen bei circa 5% .

¹²² siehe Tabelle 7.3 Modus S

DIESE RESULTATE werden auch durch die Genauigkeit der Positionsrekonstruktion beider Quellen an den 13 unabhängigen Referenzpositionen bestätigt, wie in Abbildung 10.4 gezeigt. In nur wenigen Fällen beträgt die Fehleinschätzung der Referenzposition mehr als 1 cm. Die größten Abweichungen liegen für die ^{60}Co -Quelle AA667 mit 1,4 cm und für die ^{137}Cs -Quelle AA662 mit 1,8 cm bei der Referenzposition $r_Q = 25\text{ cm}$ und $\phi_Q = 7,5^\circ$. An fast allen anderen Position ist die Positionsrekonstruktion auf rund 0,5 cm genau, wie es entsprechend der Simulationsstudie nach Abschnitt 9.4 zu erwarten ist.

ZUSAMMENFASSEND lässt sich aus dieser Studie ableiten, dass durch die kontinuierliche Rotation des Abfallfasses die Genauigkeit und die

Abbildung 10.4: Positionsabweichungen aus der Rekonstruktion der Quellen als Funktion der Referenzposition (r_Q und ϕ_Q) im Testfassabschnitt. Es wurde der Standardscanmodus mit einer kontinuierlichen Fassrotation benutzt.



Verlässlichkeit der Rekonstruktion auf der Basis des Standardscanmodus im Gegensatz zu den Erwartungen aus der Simulationsstudie in Abschnitt 9.5 verbessert werden konnten. Bei allen Positionen ist die Aktivitätsrekonstruktion genauer als $\pm 10\%$ und ist im Rahmen der statistischen Unsicherheiten immer mit der Referenzaktivität in Übereinstimmung.

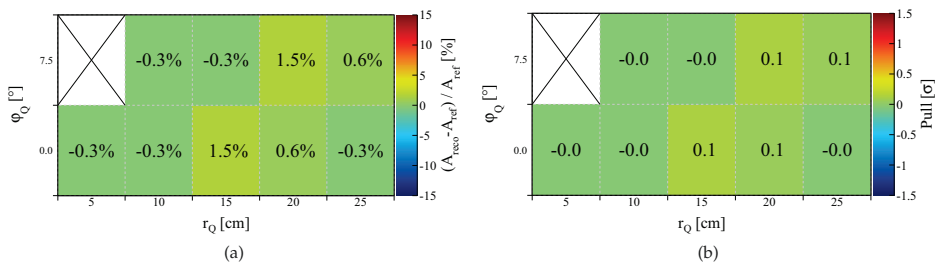
10.3 Vergleiche zwischen Standard- und Alternativscanmodus

¹²³ siehe Tabelle 6.2

¹²⁴ siehe Tabelle 6.2

NACHDEM IM LETZTEN ABSCHNITT festgestellt wurde, dass durch die kontinuierliche Fassrotation während einer SGS-Messung bereits im Standardscanmodus¹²³ auch bei außen liegenden Quellen eine genaue und verlässliche Aktivitätsrekonstruktion sichergestellt werden kann, wird in diesem Abschnitt untersucht, welche Verbesserungen dennoch durch den Alternativscanmodus¹²⁴ erreicht werden können. Um die Aktivitätsrekonstruktion auf der Grundlage beider Scanmodi zu vergleichen, wurden im Rahmen der zweiten Messkampagne analog zum vorherigen Abschnitt Messungen mit der ⁶⁰Co-Quelle AA667 im Alternativscanmodus durchgeführt. Die Aktivitätsabweichungs- sowie die Pullverteilungen aus der Auswertung der Messungen sind in Abbildung 10.5 dargestellt. Die Aktivitätsrekonstruktion bei Messungen im Alternativscanmodus sind im Vergleich zu den Ergebnissen bei Messungen im Standardscanmodus deutlich verbessert. Die maximale Abweichung beträgt hier selbst bei den außen liegenden Quellen nicht mehr als 1,5 %. Im Gegensatz zu der maximalen Abweichung von $-8,1\%$ bei derselben Quellkonfiguration im Standardscanmodus, ist dies eine deutliche Verbesserung. Erwartungsgemäß zeigt sich auch in den Pullverteilungen, dass alle rekonstruierten Aktivitäten auf der Grundlage des Alternativscanmodus deutlich innerhalb einer Standardabweichung mit den Referenzaktivitäten übereinstimmen. Dies war allerdings auch schon beim Standardscanmodus der Fall. Die Anwendung des Alternativscanmodus für SGS-Messungen ist daher aufgrund der verbesserten Genauigkeit empfehlenswert, aber wegen der doppelten Messzeit und der hinreichenden Genauigkeit im Standardscanmodus nicht zwingend notwendig.

Abbildung 10.5: Aktivitätsabweichungen und Pulls aus der Rekonstruktion der ⁶⁰Co-Quelle

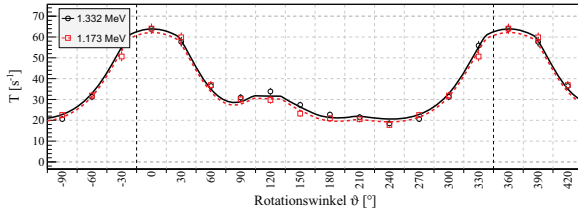


10.4 Rekonstruktion von Ensembles zweier Quellen

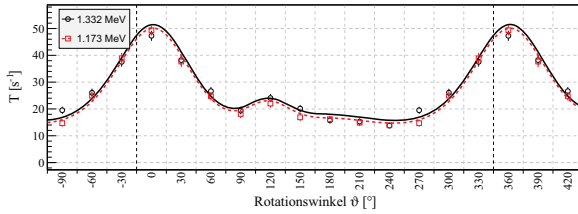
IN EINER DRITTEN MESSKAMPAGNE werden die Genauigkeit und Verlässlichkeit der Aktivitätsrekonstruktion für zwei Quellen des gleichen Radionuklids mit stark unterschiedlichen Aktivitäten untersucht. Dazu werden SGS-Messungen mit beiden ^{60}Co -Quellen AA667 und AA664, die sich um einen Faktor von zehn in ihren Aktivitäten unterscheiden, gleichzeitig durchgeführt. In Abbildung 10.6 sind die gemessenen und rekonstruierten Zählratenverteilungen für die ^{60}Co -Quellen AA667 bei $r_Q = 5\text{ cm}$ und $\phi_Q = 0^\circ$ sowie AA664 bei $r_Q = 10\text{ cm}$ und $\phi_Q = 120^\circ$ für alle vier Segmente gezeigt. Der Hauptpeak der ^{60}Co -Quelle AA664 ist im Vergleich zum Hauptpeak der



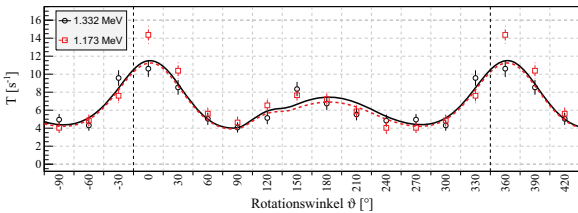
(a) Segment 1



(b) Segment 2



(c) Segment 3



(d) Segment 4

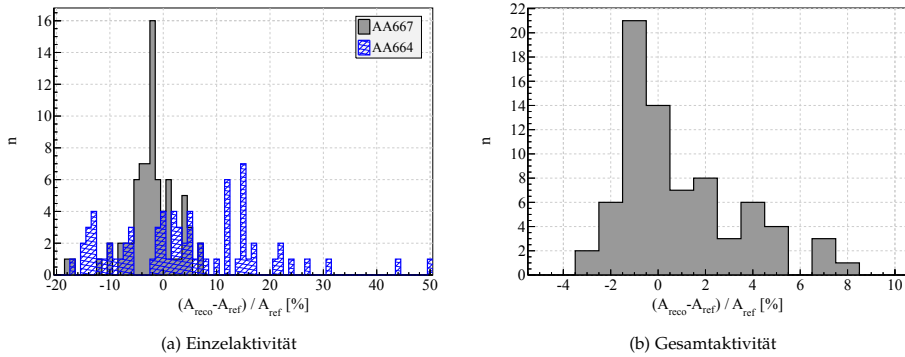
Abbildung 10.6: Gemessene (Punkte) und rekonstruierte (Linien) Zählratenverteilungen der zwei ^{60}Co -Quellen AA667 und AA664 im Testfassabschnitt. Die ^{60}Co -Quellen AA667 befindet sich bei $r_Q = 5\text{ cm}$ sowie $\phi_Q = 0^\circ$ und die ^{60}Co -Quellen bei AA664 bei $r_Q = 10\text{ cm}$ und $\phi_Q = 120^\circ$. Es wurde der Standardscanmodus mit einer kontinuierlichen Fassrotation benutzt. Zur besseren Visualisierung ist die Zählratenverteilung von -15° bis -90° und von 360° bis 435° zyklisch erweitert.

Tabelle 10.2: Werte der rekonstruierten Parameter der zwei ^{60}Co -Quellen AA667 und AA664 im Testfassabschnitt. Es wurde der Standardscanmodus mit einer kontinuierlichen Fassrotation benutzt. $\Delta A/A$ ist die Aktivitätsabweichung und $\sigma_{A\pm}$ ist die Unsicherheit der Aktivitätsabweichung.

Quelle		r_Q [cm]	ϕ_Q [°]	z_Q [cm]	$\Delta A/A$ [%]	σ_{A+} [%]	σ_{A-} [%]
AA667	Referenz	5	0	6,3			
	SGSreco	5,11	2,32	6,43	-7,61	4,58	5,11
AA664	Referenz	10	120	6,3			
	SGSreco	9,55	117	6,33	3,76	36,8	28,9
Summe	SGSreco				-0,74	7,72	7,49

Quelle AA667 nur schwierig zu erkennen. Die Übereinstimmung der gemessenen und rekonstruierten Zählratenverteilungen ist jedoch in allen vier Segmenten sehr gut. Die rekonstruierten Aktivitäten und Positionen der einzelnen Quellen sind in Tabelle 10.2 zusammengefasst. Die Positionsrekonstruktion ist selbst bei der schwächeren ^{60}Co -Quelle AA664 noch auf gut 5 mm genau. Die einzelnen Aktivitäten konnten mit einer Abweichung von -7,61 % und 3,76 % für AA667 beziehungsweise AA664 bestimmt werden. Hierbei ist zu beachten, dass die Unsicherheiten der Aktivitätsrekonstruktion für die Quelle AA664 aufgrund der deutlich schwächeren Aktivität mit circa 29 % bis 37 % deutlich größer sind, als für die Quelle AA667 mit rund 5 %. Insgesamt konnte die Gesamtaktivität des Ensembles mit einer Genauigkeit von -0,74 % bestimmt werden. Die Unsicherheiten der Gesamtaktivität liegen bei rund $\pm 7,5$ %.

FÜR DIE DETAILLIERTE Betrachtung der Genauigkeit und Verlässlichkeit der Aktivitätsrekonstruktion im oben beschriebenen Fall, werden 75 Messungen mit unterschiedlichen Positionen der ^{60}Co -Quellen AA667 und AA664 durchgeführt. Die starke ^{60}Co -Quelle AA667 wird dafür auf einer der radialen Positionen bei 0° in den Testfassabschnitt eingebracht. Bei jeder der somit fünf möglichen radialen Positionen der ^{60}Co -Quelle AA667 wird die ^{60}Co -Quelle AA664 zusätzlich bei 60°, 90° und 120° an jeweils allen radialen Positionen eingebracht. In Abbildung 10.7 sind die Aktivitätsabweichungsverteilungen für jede einzelne Quelle und für das Ensemble gezeigt. Die Aktivität der starken Quelle AA667 konnte bis auf drei Ausnahmen mit einer Genauigkeit von ± 10 % bestimmt werden. Der Median liegt bei einer leichten Unterschätzung von ungefähr -2 %. Die schwächere ^{60}Co -Quelle AA664 konnte im Vergleich zu AA667 deutlich schlechter rekonstruiert werden, wie es allerdings aufgrund der deutlich schwächeren Aktivität auch zu erwarten ist. Die Schwankungsbreite der Aktivitätsabweichung für die ^{60}Co -Quelle AA664 liegt bis auf zwei Ausnahmen bei -20 % bis 31 %, was im Rahmen der rekonstruierten Unsicherheiten verträglich mit der Referenzaktivität ist. Wichtiger als die Aktivität der einzelnen Quellen ist im Hinblick auf die Endlagerfähigkeit eines Abfallgebindes für das Endlager Konrad die Gesamtaktivität. Die Abweichungen der rekonstruierten Gesamtaktivitäten zu den Referenzgesamtaktivitäten der Ensembles aus den ^{60}Co -Quellen AA667 und AA664 liegen zwischen -3 % und 8 %. Der Median liegt sogar bei circa 0 %. Es zeigt sich somit, dass trotz der



schlechteren Rekonstruktion der Quelle AA664 eine sehr gute Genauigkeit der Aktivitätsrekonstruktion des gesamten Ensembles erzielt werden kann.

10.5 Rekonstruktion von abgeschirmten Quellen

IN DER VIERTEN MESSKAMPAGNE wird die Aktivitätsrekonstruktion von SGSreco im Industriemodus¹²⁵ bei Quellen in Abschirmbehältern getestet. In Abbildung 10.8 ist der Testfassabschnitt mit einem Abschirmbehälter in Loch 1 gezeigt. Der Abschirmbehälter besteht aus Blei und hat eine Wandstärke von 3,5 cm. Im Abschirmbehälter wird die ¹⁵²Eu-Quelle WW653 platziert, die entsprechend Tabelle 10.1 zum Zeitpunkt der Messung eine Aktivität von 97,57 MBq hat. Die Messungen der Quelle WW653 im Abschirmbehälter bei Loch 1 und 2 wurden im Standardscanmodus durchgeführt. Die Abbildungen 10.9 und 10.10 zeigen die gemessenen und rekonstruierten Zählratenverteilungen beider Anordnungen. Die charakteristischen Linien von ¹⁵²Eu unterhalb von 779 keV wurden durch die Matrix und den Abschirmbehälter komplett absorbiert und waren in den gemessenen Spektren nicht nachweisbar. Im Rahmen der Unsicherheiten der gemessenen Zählraten ergibt sich eine gute Übereinstimmung zwischen den gemessenen und rekonstruierten Zählratenverteilungen. Lediglich bei der Messung der Quelle im Loch 2 ist eine systemati-

Abbildung 10.7: Aktivitätsabweichungsverteilung für die gleichzeitige Rekonstruktion der ⁶⁰Co-Quellen AA667 und AA664 im Testfassabschnitt für jede Quelle einzeln und für die Gesamtaktivität. Es wurde der Standardscanmodus mit einer kontinuierlichen Fassrotation benutzt.

¹²⁵ siehe Tabelle 7:3 Modus I

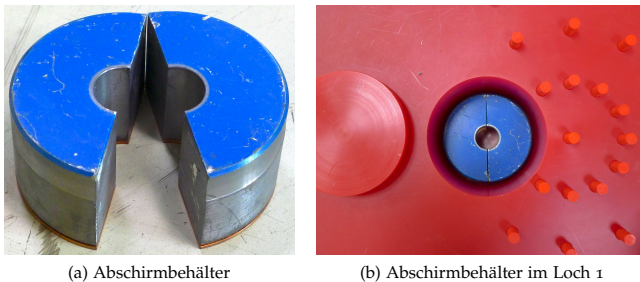


Abbildung 10.8: Testfassabschnitt mit einem Abschirmbehälter für Quellen.

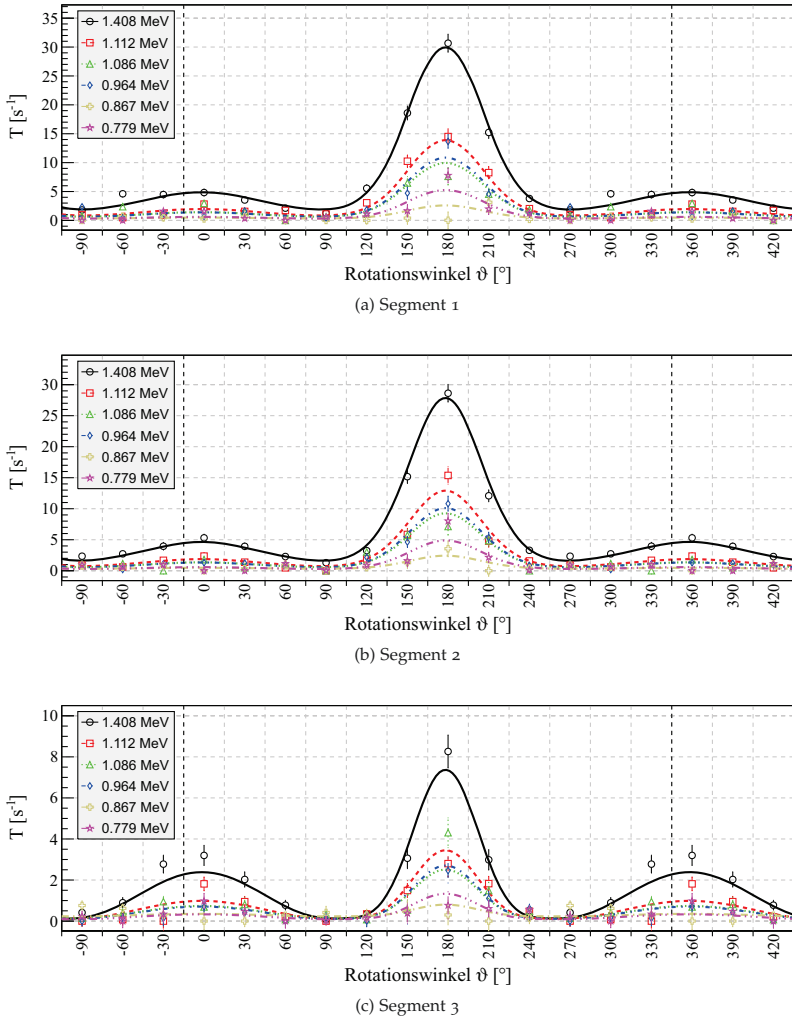
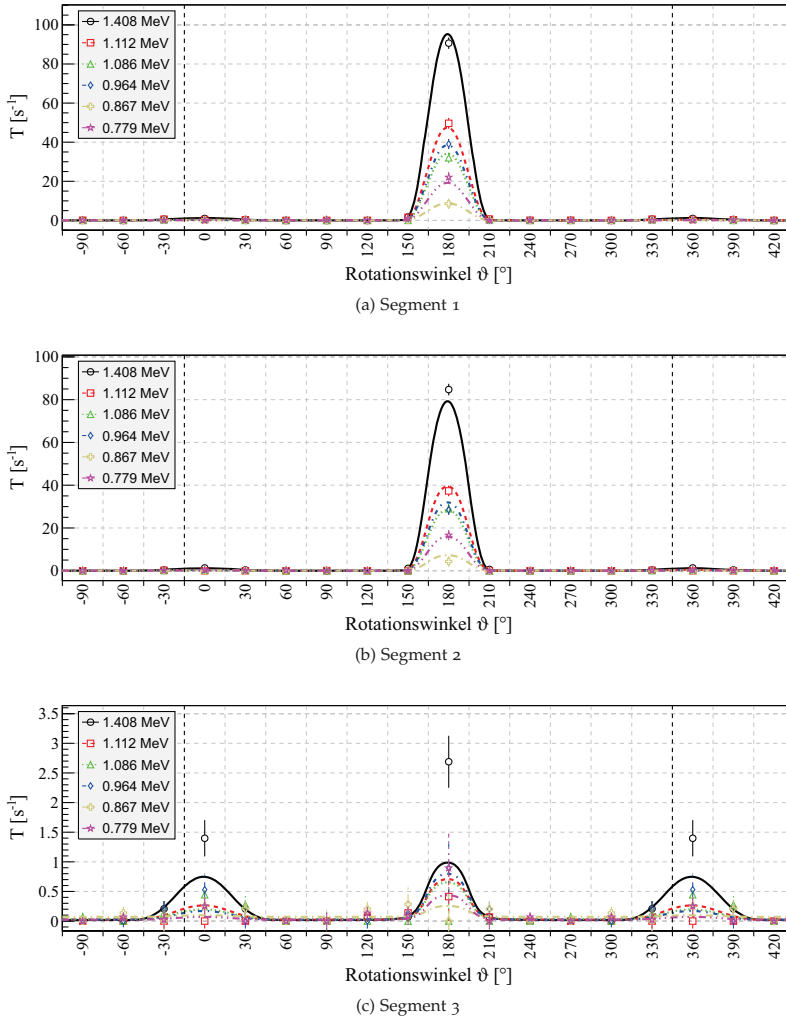


Abbildung 10.9: Gemessene (Punkte) und rekonstruierte (Linien) Zählratenverteilungen im Standardscanmodus der ^{152}Eu -Quelle WW653 in einem Abschirmbehälter mit einer Wandstärke von 3,5 mm aus Blei im Loch 1 des Testfassabschnitts. Es sind nur γ -Linien mit Energien oberhalb oberhalb von 779 keV berücksichtigt. Zur Messung wurde der Standardscanmodus mit einer kontinuierlichen Fassrotation benutzt. Zur besseren Visualisierung ist die Zählratenverteilung von -15° bis -90° und von 360° bis 435° zyklisch erweitert.

sche Unterschätzung der gemessenen Zählratenverteilung im dritten Segment festzustellen. Dies ist aber hauptsächlich auf die schlechte Zählstatistik zurückzuführen.

DIE AKTIVITÄTSREKONSTRUKTION im Absorbermodus von SGS-reco ist dabei sehr stark von der Genauigkeit der Rekonstruktion der Dicke des Abschirmbehälters abhängig. Bei bereits kleinen Über- oder Unterschätzungen der Dicke des Abschirmbehälters wird auch die Aktivität der abgeschirmten Quelle stark über- beziehungsweise unterschätzt. In der Tabelle 10.3 sind die Ergebnisse der oben beschriebenen Rekonstruktionen zusammengefasst. Die Position der Quelle konnte in beiden Fällen mit einer Genauigkeit von rund 1,5 cm bestimmt werden. Bei der Rekonstruktion der Quelle in Loch 1 wur-



de die Dicke des Abschirmbehälters um rund 1,4 mm unterschätzt. Trotzdem konnte die Aktivität auf circa 1,7 % genau bestimmt werden. Die Unsicherheiten der Aktivitätsrekonstruktion sind bei Rekonstruktionen im Absorbermodus erwartungsgemäß deutlich größer, als bei Rekonstruktionen im Standardmodus. Dies liegt an der starken Korrelation zwischen der Dicke des Abschirmbehälters und der Quellaktivität in der Rekonstruktion. Bei der Rekonstruktion der Quelle an Loch 1 liegen die Unsicherheiten in einem Bereich von $\pm 30\%$. Bei der Rekonstruktion der Quelle in Loch 2 wurde die Dicke des Abschirmbehälters um rund 4 mm überschätzt. Dies führt direkt zu einer deutlichen Überschätzung der Referenzaktivität um rund 36 %. Im Rahmen der Unsicherheiten ist das allerdings zumindest im Bereich von zwei Standardabweichungen mit der Erwartung verträglich. Somit können auch die Aktivitäten von Quellen in Abschirmbehältern

Abbildung 10.10: Gemessene (Punkte) und rekonstruierte (Linien) Zählratenverteilungen im Standardscanmodus der ^{152}Eu -Quelle WW653 in einem Abschirmbehälter mit einer Wandstärke von 3,5 mm aus Blei im Loch 2 des Testfassabschnitts. Es sind nur γ -Linien mit Energien oberhalb oberhalb von 779 keV berücksichtigt. Zur Messung wurde der Standardscanmodus mit einer kontinuierlichen Fassrotation benutzt. Zur besseren Visualisierung ist die Zählratenverteilung von -15° bis -90° und von 360° bis 435° zyklisch erweitert.

Tabelle 10.3: Werte der rekonstruierten Parameter der ^{152}Eu -Quelle WW653 in einem Abschirmbehälter in den Löchern 1 und 2 im Testfassabschnitt. Es wurde der Standardscanmodus mit einer kontinuierlichen Fassrotation benutzt. $\Delta A/A$ ist die Aktivitätsabweichung und $\sigma_{A\pm}$ ist die Unsicherheit der Aktivitätsabweichung.

	r_Q [cm]	ϕ_Q [°]	z_Q [cm]	d_A [cm]	$\Delta A/A$ [%]	σ_{A+} [%]	σ_{A-} [%]
Ref. Loch 1	7,5	180	4	3,5			
SGSreco	8,43	178	3,53	3,36	1,67	34,4	25,3
Ref. Loch 2	20	180	4	3,5			
SGSreco	21,1	179	3,55	3,88	36,3	32,2	24,3

mit einer angemessenen Genauigkeit und Verlässlichkeit bestimmt werden.

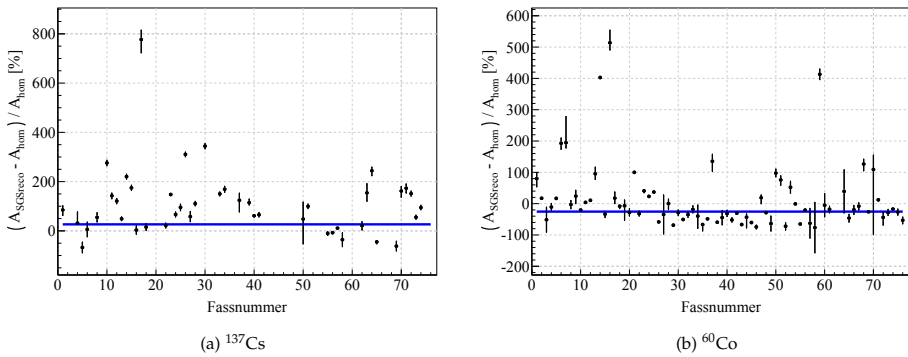
10.6 Anwendung bei konditionierten Abfallfässern

IM RAHMEN DIESER STUDIE wurde das Aktivitätsinventar von ^{60}Co und ^{137}Cs in insgesamt 76 Abfallfässern aus dem Betrieb von deutschen Kernkraftwerken, die γ -spektrometrisch vermessen wurden, mit SGSreco reanalysiert. Eine erste Untersuchung dieser Abfallfässer bezüglich der Homogenität des Radionuklidinventars und der Anzahl an Presslingen pro Fass sowie deren Dichten wurde bereits in Abschnitt 6.5 vorgestellt. Aufgrund der Deklaration des Abfallverursachers ist für jedes Abfallfass die Anzahl der verpackten Presslinge und deren Reihenfolge im Abfallfass bekannt. Von jedem Pressling ist zusätzlich das Gewicht, die Höhe und die stofflichen Zusammensetzung bekannt. Nach Abschnitt 6.5 liegen die Dichten der Presslinge überwiegend in einem Bereich von $0,5\text{ g cm}^{-3}$ und $2,3\text{ g cm}^{-3}$. In Tabelle 10.4 sind alle auftretenden stoffliche Zusammensetzungen der Presslinge zusammengefasst. Zur Bestimmung der Massenschwächungskoeffizienten der Abfallmatrix bezüglich γ -Strahlung, sind zusätzlich die angenommen Summenformeln der deklarierten stofflichen Zusammensetzungen aufgeführt.

Tabelle 10.4: Zusammenfassung der deklarierten stofflichen Zusammensetzung der Abfallmatrix in den Presslingen der 76 reanalysierten Abfallfässern und die jeweilig angenommen Summenformeln.

BEI DER REKONSTRUKTION MIT SGSRECO im Standardmodus wurden ausschließlich die beiden Schlüsselnuklide ^{60}Co und ^{137}Cs berücksichtigt. In Abbildung 10.11 sind die Abweichungen von der

Deklaration	Summenformel	Deklaration	Summenformel
Metall	Fe	Bauschutt	$CaO + SiO_2$
Sekundärabfall	CHO	Hochdruckschläuche	$C_5H_8S_2$
Mischabfall	C_2H_3Cl	Kabel	$Al + C_2H_3Cl$
Gummi	$C_5H_8S_2$	Kunststoff ohne PVC	$C_5H_8S_2$
Glaswolle	SiO_2	Zement	$CaO + SiO_2$
Stahl	Fe	Ofenausbruch	SiO_2
Staub	CHO	PVC	C_2H_3Cl
Schweißmatten	C_2H_3Cl	Einweganzüge	$CHO + C_2H_3Cl$
Isolationsmaterialien	SiO_2	Lacke und Farben	CH
Holz und Aluminium	$CHO + Al$	Filterflies	Al
Aluminium	Al	Wäschen und Folie	$CHO + C_2H_3Cl$
Elektroschrott	Cu	Farbreste	CH



mit SGSreco und mit der konventionellen Methode rekonstruierten Gesamtaktivitäten aller 76 Abfallfässer dargestellt. Wie es in den Abschnitten 9.4 und 9.8 erwartet wurde, ergeben sich teilweise Abweichungen um mehrere Größenordnungen. Die blaue Linie zeigt die Diskrepanz der beiden rekonstruierten Gesamtaktivitäten für die Summe aller Fässer, wie sie bei der jährlichen Bilanzierung der eingelagerten Aktivitäten im Endlager Konrad bestimmt wird. Insgesamt ist die durch SGSreco rekonstruierte ^{60}Co -Aktivität in insgesamt 74 Fässern um $25,4\% \text{ }^{+3,89\%}_{-10,08\%}$ niedriger als mit der konventionellen Methode. Bei den deutlich geringeren ^{137}Cs -Aktivitäten in insgesamt nur 39 Fässern wurde hingegen eine $26,5\% \text{ }^{+5,74\%}_{-6,05\%}$ höhere Aktivität mit SGSreco rekonstruiert. Diese Abweichungen haben nach Abschnitt 2.4 direkten Einfluss auf die Endlagerungskosten der Abfälle beziehungsweise die Ausnutzung der Endlagerkapazität des Endlagers Konrad. Zudem kann die Kenntnis über die Positionen gerade von starken Quellen zur Optimierung der Verpackung von Abfallfässern in endlagerfähige Container hinsichtlich der zu erwartenden Dosisleistung der Abfallgebinde benutzt werden. Detaillierte Informationen über die Rekonstruktion jedes einzelnen dieser Abfallfässer sind in Anhang B zu finden.

Abbildung 10.11: Abweichungen von der mit SGSreco und der konventionellen Methode rekonstruierten Aktivitäten der Schlüsselnuclide ^{60}Co und ^{137}Cs für die 76 reanalysierten Abfallfässer. Die blaue Linie zeigt die Abweichung der Summe aller Aktivitäten der einzelnen Abfallfässer.

11

Entwicklungspotential für γ -spektrometrische Messverfahren

INHALT:

11.1	LaBr ₃ -Detektoren in SGS-Messsystemen	154
11.2	Transmissionskorrigierte SGS-Messungen	155

11.1 LaBr₃-Detektoren in SGS-Messsystemen

DETEKTIONSSYSTEME FÜR SGS-MESSUNGEN müssen über eine ausreichende Energieauflösung verfügen, um relevante ETM-Radionuklide auch in komplexen γ -Spektren durch die Auflösung ihrer charakteristischen Peaks zu identifizieren¹²⁶. Als Standard werden hierfür, wie auch im SGS-System Gernod II, HPGe-Halbleiterdetektoren eingesetzt, da sie über eine sehr gute Energieauflösung verfügen (0,33 % bei 661,7 keV mit einer Kristallgröße von 2 in \times 2 in). Nachteile dieser Halbleiterdetektoren sind ihre notwendige Kühlung durch flüssigen Stickstoff oder durch elektrische Kühlgeräte und ihre im Vergleich zu Szintillationsdetektoren niedrigeren Effizienzen und schlechteren Zeitaufösungen¹²⁷. Mit den LaBr₃-Szintillationsdetektoren ist in den letzten Jahren ein Detektionssystem auf den Markt gekommen, das die Vorteile von klassischen Szintillationsdetektoren, wie den NaI-Detektoren, mit einer vergleichsweise verbesserten Energieauflösung kombiniert (2,6 % bei 661,7 keV mit einer Kristallgröße von 2 in \times 2 in). Der Einsatz von LaBr₃-Detektoren in der zerstörungsfreien radiologischen Charakterisierung von Abfallfässern würde somit neben der besseren Effizienz und Zeitauflösung auch zu weniger Betriebsaufwand und somit auch zu weniger Betriebskosten führen, weil diese Detektionssysteme nicht gekühlt werden müssen. Aufgrund dieser Vorteile wurde die Eignung von LaBr₃-Detektoren für die zerstörungsfreie radiologische Charakterisierung von Abfallfässern evaluiert.¹²⁸ Dazu wurde die Leistungsfähigkeit von LaBr₃-Detektoren mit der von HPGe-Detektoren im Hinblick auf Effizienzen, Energieauflösungen, instrumentellen Nachweisgrenzen, Totzeiten und Untergrundspektren verglichen. Zudem wurde die Leistungsfähigkeit beider Detektionssysteme durch die Messung von Referenzproben aus kombinierten Prüfstrahlern von Schlüsselnukliden aus radioaktiven Abfällen getestet.

¹²⁶ siehe dazu Abschnitt 3.5 und 3.6

¹²⁷ siehe hierzu die Ausführliche Diskussion in Abschnitt 3.5

¹²⁸ T. Krings, C. Göbbels und E. Maurhofer. "On the Applicability of LaBr₃ Scintillation-Detectors in the Non-Destructive Routine Characterization of Radioactive Waste Drums." In: *in preparation* (2013); C. Göbbels. "Studie zur Anwendung des LaBr₃-Detektors für die Charakterisierung radioaktiver Abfälle mittels Gamm-Scanning". B.Eng. FH Aachen, 2012.

INNERHALB DIESER STUDIE wurde gezeigt, dass die Quantifizierung von Schlüsselnukliden in den Referenzproben mit beiden Detektionssystemen eine gleichwertige Genauigkeit und Verlässlichkeit zeigt. Es ist jedoch trotz der um einen Faktor von fast zwei bis drei höheren Effizienz der LaBr₃-Detektoren bei gleichem Kristallvolumen nicht möglich, ein vergleichbares Niveau in der Genauigkeit und Verlässlichkeit der Quantifizierung bei kürzeren Messzeiten als mit HPGe-Detektoren zu erreichen. Gleichwohl konnten trotz der vergleichsweise schlechteren Energieauflösung auch in den γ -Spektren, die mit den LaBr₃-Detektoren gemessen wurden, stets alle relevanten Schlüsselnuklide identifiziert und quantifiziert werden. Die Totzeiten der LaBr₃-Detektoren bei der Messung von Proben mit einer hohen Zählstatistik sind im Vergleich zu den Totzeiten bei Messungen mit HPGe-Detektoren deutlich geringer. Dies ist gerade im Hinblick auf die Messung von Abfallfässern mit einer zu erwartend hohen Zählstatistik ein großer Vorteil von LaBr₃-Detektoren. Das Fazit dieser Studie

ist daher, dass LaBr_3 -Detektoren hauptsächlich aufgrund der besseren Zeitauflösung und des geringeren Betriebsaufwands bei sonst fast gleichwertiger Leistungsfähigkeit bezüglich der Identifizierung und Quantifizierung von Schlüsselnukliden eine interessante Alternative zu HPGe-Detektoren für die zerstörungsfreie radiologische Charakterisierung darstellen. Hochauflösende γ -spektrometrische Messungen zur Identifizierung eines breiten Spektrums an Radionukliden sind allerdings weiterhin nur mit HPGe-Detektoren möglich.

11.2 Transmissionskorrigierte SGS-Messungen

FÜR DIE REKONSTRUKTION des radionuklidspezifischen Aktivitätsinventars in radioaktiven Abfallfässern mittels SGS-Messungen wird sowohl bei SGSreco als auch bei der konventionellen Methode eine Homogenität der Matrixverteilung gefordert. Es konnte allerdings in verschiedensten Arbeiten gezeigt werden, dass mindestens 15 % aller Abfallfässer eine stark heterogene Matrixverteilung aufweisen.¹²⁹ In diesen Fällen können klassischerweise entweder bildgebende Verfahren angewendet werden¹³⁰, oder klassische SGS-Messungen können durch Transmissionsmessungen erweitert werden,¹³¹ um eine ausreichende Genauigkeit und Verlässlichkeit der Aktivitätsrekonstruktion sicherzustellen. Eine Transmissionskorrigierte Segmentierte γ -Scan Messung (T-SGS) bietet die Möglichkeit lineare Schwächungskoeffizienten für einzelne Abschnitte der Abfallmatrix zu bestimmen. Eine schematische Darstellung eines T-SGS-Messsystems ist in Abbildung 11.1 zu finden. Bei T-SGS-Messungen werden Abfallfässer mit einer externen Transmissionsquelle, die stark kollimiert ist, durchstrahlt. Bei bekannter Aktivität der Transmissionsquelle kann durch die Auswertung der Transmissionsspektren auf die lineare Schwächungskoeffizienten für die einzelnen durchstrahlten Abschnitte der Abfallmatrix geschlossen werden. Im Gegensatz zu bildgebenden Verfahren ist hier das Auflösungsvermögen für heterogene Matrizen allerdings deutlich schlechter, da das Abfallfass im Wesentlichen integral in einem Segment vermessen wird und somit nur eine vertikale Heterogenität aufgelöst werden kann. Insbesondere für Abfallfässer mit unbekannten Befüllungsgraden bieten T-SGS-Messungen ein erhebliches Potential zur Verbesserung der Aktivitätsrekonstruktion. Wichtig für die Auswahl einer Transmissionsquelle ist ein Spektrum an charakteristischen γ -Linien, das sich über einen breiten Energiebereich erstreckt. Nur so können die linearen Schwächungskoeffizienten für alle γ -Linien der nachzuweisenden Schlüsselnuklide extrapoliert werden. Als Transmissionsquelle werden daher meist ^{192}Ir und ^{152}Eu benutzt.¹³² Für eine Kupplung von T-SGS-Messungen mit der Aktivitätsrekonstruktion durch SGSreco muss an jedem Sektor des Abfallfasses auch ein Transmissionsspektrum aufgenommen werden. So kann jedem Sektor ein Satz an linearen Schwächungskoeffizienten zugewiesen werden. Durch SGSreco können dann die bestimmten linearen Schwächungskoeffizienten einzelner Fassabschnitte bei der Berechnung der

¹²⁹ Sanden u. a., s. Anm. 33; Caspary und Sanden, s. Anm. 33; Mauerhofer und Odoj, s. Anm. 29.

¹³⁰ siehe Abschnitt 3.1

¹³¹ Martin, Jones und Parker, s. Anm. 48.

¹³² siehe Mauerhofer und Odoj, s. Anm. 29, Abschnitt 3.5.3.

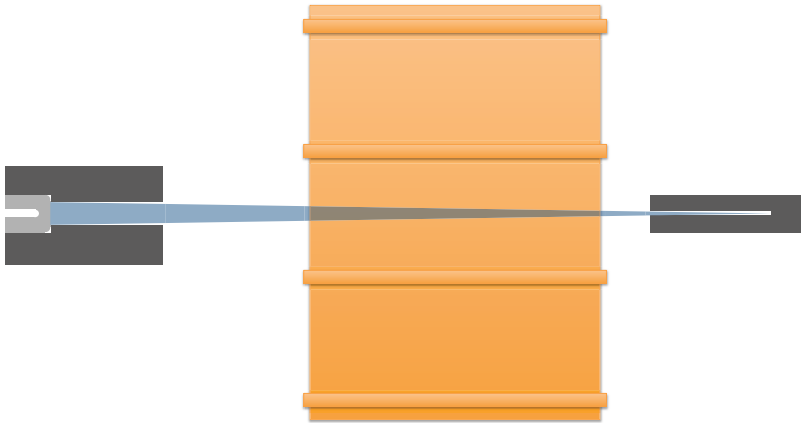


Abbildung 11.1: Schematische Zeichnung eines Systems für transmissionskorrigierte segmentierte γ -Scan Messungen. Das Detektionssystem besteht aus dem HPGe-Detektor (hellgrau) und dem Kollimator (dunkelgrau). Das Abfallfass ist in gelb dargestellt. Die Transmissionquelle ist in einem Kollimator rechts vom Abfallfass gezeigt. Der blaue Kegel zeigt den beprobten Fassabschnitt während einer Transmissionsmessung.

Absorption der γ -Strahlung entlang ihrer Trajektorien berücksichtigt werden. Dies führt dann zu einer entsprechend korrigierten Aktivitätsrekonstruktion. Durch eine Kopplung von T-SGS-Messungen mit der Routineauswertung durch SGSreco kann somit auch die Aktivitätsrekonstruktion bei heterogenen Matrixverteilungen verbessert werden.

12

Zusammenfassung -
Leistungsfähigkeit von SGSreco

¹³³ siehe Abschnitt 6.5

DIE ZERSTÖRUNGSFREIE RADIOLOGISCHE CHARAKTERISIERUNG von Abfallfässern wird nach heutigem Stand von Wissenschaft und Technik routinemäßig durch SGS-Messungen durchgeführt. Die konventionelle Rekonstruktion des radionuklidspezifischen Aktivitätsinventars beruht dabei auf der Annahme einer homogenen Verteilung der Radionuklide und der Abfallmatrix. Diese Annahmen sind allerdings nur für maximal 25 % aller radioaktiven Abfallfässer hinreichend erfüllt¹³³. Die Aktivitätsrekonstruktion nach der konventionellen Methode hat in diesen Fällen eine Genauigkeit von 30 %. In allen übrigen Fällen können Abweichungen zwischen Unterschätzungen von –100 % bis zu Überschätzungen um einige Größenordnungen auftreten. Mit SGSreco wurde daher ein neues Analyse-Framework für die Aktivitätsrekonstruktion von heterogenen Radionuklidinventaren in radioaktiven Abfallfässern durch SGS-Messungen entwickelt. SGSreco ist speziell für die Rekonstruktion von Punktquellen und homogenen Radionuklidinventaren in Abfallfässern mit verpressten Abfallprodukten, zementierten oder bituminierten Abfallprodukten und industriellen Abfällen mit Abschirmbehältern konzipiert. Die Rekonstruktion des Radionuklidinventars in SGSreco beruht auf einer Anpassung eines physikalisch motivierten geometrischen Modells an die aus einer SGS-Messung bestimmten Zählratenverteilungen der charakteristischen γ -Linien eines identifizierten Radionuklids. Im Rahmen dieser Anpassung können die Positionen und Aktivitäten einzelner Punktquellen sowie die Aktivität einer homogenen Verteilung in einem Fassabschnitt rekonstruiert werden. Zusätzlich kann bei der Anpassung in SGSreco berücksichtigt werden, dass die Dichte der Abfallmatrix oder die Wandstärke eines Abschirmbehälters für eine Punktquelle im Vorhinein unbekannt ist. Diese Daten waren bis jetzt experimentell nicht zugänglich. Erstmals ist zudem auch eine Quantifizierung von sinnvollen statistischen und systematischen Unsicherheiten möglich.

DIE LEISTUNGSFÄHIGKEIT von SGSreco wurde im Rahmen von Simulationsstudien für homogene Radionuklidverteilungen, einzelne Punktquellen bei bekannten und unbekannten Matrixdichten, Ensembles mehrerer Punktquellen und sphärisch ausgedehnten Quellen evaluiert. Dazu wurden die Schlüsselnuklide ^{60}Co und ^{137}Cs sowie ein Bereich von Matrixdichten zwischen $0,5 \text{ g cm}^{-3}$ und $2,3 \text{ g cm}^{-3}$ berücksichtigt. Die Ergebnisse dieser Simulationsstudien wurden durch SGS-Messungen an einem Referenzfass mit einem homogenen Radionuklidinventar und an einem eigens konstruierten Testfassabschnitt für heterogene Radionuklidinventare validiert. Im Rahmen dieser experimentellen Validierung wurde die Leistungsfähigkeit von SGSreco auch für Prüfstrahler in Abschirmbehältern mit unbekannter Wandstärke getestet. In Tabelle 12.1 ist die zu erwartenden Genauigkeit, Unsicherheit und Rechenzeit der Aktivitätsrekonstruktion durch SGSreco und die konventionelle Methode für die betrachteten Szenarien zusammengefasst. Die hier angegebenen Werte verstehen sich als Richtwerte. Übereinstimmend zwischen den Messungen und den

Szenario	Methode	Genauigkeit	Unsicherheit	Rechenzeit
Homogenes Radionuklidinventar	SGSreco	0 % bis 6 %	~ 5 %	~ 20 s
	konv.	-15 % bis 30 %	> 10 %	< 1 s
Eine Punktquelle	SGSreco	-12 % bis 7 %	~ 5 %	< 2 s
	konv.	-100 % bis 300 %	-	< 1 s
Zwei bis fünf Punktquellen	SGSreco	-7 % bis 14 %	~ 8 %	< 40 s
	konv.	-50 % bis 250 %	-	< 1 s
Matrixmodus (eine Punktquelle)	SGSreco	-3 % bis 35 %	40 % bis 70 %	< 2 s
	konv.	-	-	-
Absorbermodus (eine Punktquelle)	SGSreco	~ ±40 %	25 % bis 40 %	< 2 s
	konv.	-	-	-
Sphärische Quellen ($R < 2$ cm)	SGSreco	-12 % bis 7 %	~ 10 %	< 2 s
	konv.	-100 % bis 300 %	-	< 1 s
Sphärische Quellen ($R > 2$ cm)	SGSreco	-10 % bis 50 %	~ 10 %	< 2 s
	konv.	-70 % bis 300 %	-	< 1 s

Simulationsstudien wurde gezeigt, dass die Aktivitätsrekonstruktion von homogenen Radionuklidinventaren durch die konventionelle Methode von Abweichungen bis zu 30 % durch SGSreco auf maximal 10 % verbessert werden konnte. Bei der Rekonstruktion von Punktquellen ist die Verbesserung durch SGSreco erwartungsgemäß noch deutlicher. So können die Aktivitäten von bis zu fünf Punktquellen in einem Fassabschnitt mit Abweichungen von nur rund -7 % bis 14 % bestimmt werden. Aktivitätsrekonstruktionen durch die konventionelle Methode sind hier erwartungsgemäß mit -50 % bis 250 % stark abweichend. Im Falle von unbekannten Matrixdichten oder von Abschirmbehältern mit unbekannten Wandstärken ist die Genauigkeit der Aktivitätsrekonstruktion mit den zu erwartenden Unsicherheiten verträglich. In wenigen Fällen können die Abweichungen von den Referenzaktivitäten in Abhängigkeit von der Matrixdichte hier allerdings bis zu 35 % bei Unsicherheiten bis zu 70 % betragen. Bei der Rekonstruktion von sphärisch ausgedehnten Quellen sind bis zu Quellradien von 2 cm keine zusätzlichen Verluste in der Genauigkeit zu erwarten. Erst bei Radien ab 2 cm können Abweichungen bis zu einer Unterschätzung von 50 % auftreten. Das ist aber auch zu erwarten, da die Anforderungen von SGSreco an die Verteilung des Radionuklidinventars in diesen Fällen verletzt sind.

Tabelle 12.1: Richtwerte für die Genauigkeit, Unsicherheiten und Rechenzeiten der konventionellen Methode und von SGSreco für die Aktivitätsrekonstruktion bei unterschiedlichen Szenarien.

IN DER EXPERIMENTELLEN VALIDIERUNG konnte gezeigt werden, dass eine genaue und verlässliche Aktivitätsrekonstruktion durch SGSreco bereits auf der Grundlage des Standardscanmodus mit insgesamt 240 Sektormessungen bei einer Gesamtmesszeit von 1 h pro Abfallfass mit einem Volumen von 200 l garantiert werden kann. Es müssen daher keine Veränderungen der Messparameter, wie sie standardmäßig eingestellt sind, vorgenommen werden. Da die Aktivitätsrekonstruktion lediglich auf einem physikalisch motivierten geometrischen Modell beruht, kann SGSreco flexibel auch bei bereits in Betrieb befindlichen SGS-Messsystemen benutzt werden, solange

¹³⁴N. Qian u. a. "Analytical calculation of the collimated detector response for the characterization of nuclear waste drums by segmented gamma scanning". In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 292.3 (Jan. 2012), S. 1325–1328.

der Kollimator des Detektionssystems ein zylindrisches, wie in dieser Arbeit vorgestellt, oder ein quadratisches¹³⁴ Kollimationsfenster besitzt. Generell ist die Implementation von anderen Kollimationsfenstern möglich, aber bis jetzt nicht berücksichtigt worden. SGSreco benötigt für die Rekonstruktion eines Radionuklidinventars in einem Fassabschnitt nicht mehr als 2 min Rechenzeit.

Mit SGSRECO wird in dieser Arbeit ein Analyse-Framework für die radionuklidspezifische Aktivitätsrekonstruktion vorgestellt, dass die bisherigen Auswertemethoden in der Genauigkeit der Aktivitätsrekonstruktion deutlich verbessert und für Routinemessungen einsetzbar ist. Durch SGSreco wird erstmals die Möglichkeit einer Bestimmung systematischer und statistischer Unsicherheiten sowie von Parametern, wie der Matrixdichte und der Dicke eines Abschirmbehälters, geboten.



Deklarationspflichtige Radionuklide für das Endlager Konrad

In Tabelle A.1 sind die physikalischen Daten der 190 deklarationspflichtigen Radionuklide für das Endlager Konrad aufgeführt. Die physikalischen Daten basieren auf den Angaben aus dem WWW Table of Radioactive Isotopes.¹³⁵ Die Radionuklide sind anhand ihrer Massenzahlen sortiert. Zusätzlich sind die charakteristischen diskreten Energien der assoziierten α - und γ -Strahlung angegeben. Bei der β -Strahlung ist die maximale Energie des β -Spektrums angegeben. $T_{1/2}$ steht für die Halbwertszeit und ϵ für den Elektroneneinfang.

¹³⁵ Ekström und Firestone, s. Anm. 74.

Tabelle A.1: Zusammenfassung der physikalischen Daten der 190 deklationspflichtigen Radionuklide für endzulagernde radioaktive Abfälle im Endlager Konrad.

	$T_{1/2}$	Zerfall	E_{β} [keV]	E_{γ} [keV]	E_{α} [keV]
^3H	12,3 a	β^-	18,6		
^7Be	53,1 d	ϵ		477,6	
^{10}Be	$1,51 \times 10^6$ a	β^-	555,8		
^{14}C	5730 a	β^-	156,5		
^{22}Na	2,60 d	$\epsilon + \beta^+$		1274,5	
^{26}Al	$7,17 \times 10^5$ a	$\epsilon + \beta^+$		1808,7; 1129,7	
^{32}P	14,3 d	β^-	1710,7		
^{33}P	25,3 d	β^-	248,5		
^{35}S	87,3 d	β^-	167,1		
^{36}Cl	$3,01 \times 10^5$ a	$\beta^-, \epsilon + \beta^+$	708,6		
^{37}Ar	35,0 d	ϵ			
^{39}Ar	269 a	β^-	565,0		
^{40}K	$1,28 \times 10^9$ a	$\beta^-, \epsilon + \beta^+$	1311,1	1460,8	
^{41}Ca	$1,03 \times 10^5$ a	ϵ			
^{45}Ca	163 d	β^-	256,8		
^{44}Ti	63,0 a	ϵ		78,3; 67,9...	
^{46}Sc	83,8 d	β^-	356,9	1120,5; 889,3	
^{48}V	16,0 d	$\epsilon + \beta^+$		983,5; 1312,1...	
^{49}V	330 d	ϵ			
^{51}Cr	27,7 d	ϵ		320,1	
^{53}Mn	$3,74 \times 10^6$ a	ϵ			
^{54}Mn	312,3 d	$\epsilon + \beta^+$		834,8	
^{55}Fe	2,73 a	ϵ			
^{59}Fe	44,5 d	β^-	465,94; 273,6...	1099,3; 1291,6...	
^{56}Co	77,3 d	$\epsilon + \beta^+$		846,8; 1238,3...	
^{57}Co	271,8 d	ϵ		122,1; 136,5...	
^{58}Co	70,9 d	$\epsilon + \beta^+$		810,8	
^{60}Co	5,27 a	β^-	318,13	1173,2; 1332,5	
^{59}Ni	$7,6 \times 10^4$ a	$\epsilon + \beta^+$			
^{63}Ni	100 a	β^-	66,9		
^{65}Zn	244 d	$\epsilon + \beta^+$		1115,5	
^{68}Ge	271 d	ϵ			
^{73}As	80,3 d	ϵ		53,4	

Fortsetzung Tabelle A.1

	$T_{1/2}$	Zerfall	E_{β} [keV]	E_{γ} [keV]	E_{α} [keV]
⁷⁵ Se	120 d	ϵ		264,7; 136,0...	
⁷⁹ Se	$1,13 \times 10^6$ a	β^-	151,0		
⁸¹ Kr	$2,29 \times 10^5$ a	ϵ			
⁸⁵ Kr	10,8 a	β^-	687,1		
⁸³ Rb	86,2 d	ϵ		520,4; 529,6...	
⁸⁴ Rb	32,8 d	$\epsilon + \beta^+, \beta^-$	894,0	881,6	
⁸⁶ Rb	19,6 d	β^-	1774,2; 697,5	1076,6	
⁸⁷ Rb	$4,75 \times 10^{10}$ a	β^-	283,3		
⁸² Sr	25,6 d	ϵ			
⁸⁵ Sr	64,8 d	ϵ		514,0	
⁸⁹ Sr	50,5 d	β^-	1495,1		
⁹⁰ Sr	28,8 a	β^-	546,0		
⁸⁸ Y	107 d	ϵ		1836,1; 898,0	
⁹¹ Y	58,5 d	β^-	1544,8		
⁹³ Zr	$1,53 \times 10^6$ a	β^-	60,0; 91,4		
⁹⁵ Zr	64,0 d	β^-	368,1; 400,6...	756,7; 724,2	
⁹² Nb	$3,47 \times 10^7$ a	$\epsilon + \beta^+$		561,0; 934,5	
^{93m} Nb	16,1 a	IT			
⁹⁴ Nb	$2,03 \times 10^4$ a	β^-	471,7	871,1; 702,6	
⁹⁵ Nb	35,0 d	β^-	159,8	765,8	
⁹³ Mo	$4,00 \times 10^3$ a	ϵ		30,8	
^{95m} Tc	61,0 d	$\epsilon + \beta^+, IT$		204,1; 582,1...	
⁹⁷ Tc	$2,60 \times 10^6$ a	ϵ			
⁹⁹ Tc	$2,11 \times 10^5$ a	β^-	293,7		
¹⁰¹ Rh	3,3 a	ϵ		198,0; 127,2...	
¹⁰² Rh	207 d	ϵ, β^-	1151,0	556,4; 475,1...	
^{102m} Rh	2,9 a	ϵ		475,1; 631,3...	
¹⁰³ Ru	39,3 d	β^-	226,6; 113,3	497,1; 610,3	
¹⁰⁶ Ru	373 d	β^-	39,4		
¹⁰⁷ Pd	$6,50 \times 10^6$ a	β^-	33,0		
^{108m} Ag	418 a	ϵ, IT		722,9; 433,9...	
^{110m} Ag	249 d	β^-, IT	83,0; 529,8	657,8; 884,7...	
¹¹³ Sn	115 d	ϵ		391,7; 255,1	
^{117m} Sn	13,6 d	IT		158,6; 156,0	
^{119m} Sn	293 d	IT		23,9; 25,3	
^{121m} Sn	55 a	IT, β^-	359,3	37,1	
¹²³ Sn	129 d	β^-	1403,0		
¹⁰⁹ Cd	462 d	ϵ		88,0	
^{113m} Cd	14,1 a	β^-	316,0		
^{115m} Cd	44,6 d	β^-	1627,0; 693,2	933,8	
^{114m} In	49,5 d	IT, ϵ		190,3; 558,5...	
¹²⁴ Sb	60,2 d	β^-	610,8; 2301,8...	602,7; 1691,0...	

Fortsetzung Tabelle A.1

	$T_{1/2}$	Zerfall	E_{β} [keV]	E_{γ} [keV]	E_{α} [keV]
^{125}Sb	2,76 a	β^-	303, 8; 130, 6...	427, 9; 600, 6...	
^{126}Sb	12,5 d	β^-	476, 0; 1893, 8...	666, 3; 695, 0...	
^{123m}Te	120 d	IT		159, 0	
^{125m}Te	57,4 d	IT		35, 5	
^{127m}Te	109 d	IT, β^-	728, 7		
^{129m}Te	33,6 d	IT, β^-	1603, 5; 907, 6	695, 9	
^{126}Sn	$1,00 \times 10^5$ a	β^-	252, 1	87, 6; 64, 2...	
^{125}I	59,4 d	ϵ		35, 5	
^{129}I	$1,60 \times 10^7$ a	β^-	154, 4	39, 6	
^{131m}Xe	11,8 d	IT		163, 9	
^{134}Cs	2,06 a	β^-	658, 1; 88, 9...	604, 7; 795, 9...	
^{135}Cs	$2,30 \times 10^6$ a	β^-	269, 3		
^{136}Cs	13,2 d	β^-	341, 1; 681, 6...	818, 5; 1048, 1...	
^{137}Cs	30,1 a	β^-	514, 0; 1175, 6	661, 7	
^{133}Ba	10,5 a	ϵ		356, 0; 81, 0...	
^{140}Ba	12,8 d	β^-	1006, 2; 1020, 0...	537, 3; 30, 0...	
^{139}Ce	138 d	ϵ		165, 9	
^{141}Ce	32,5 d	β^-	435, 26; 580, 7	145, 4	
^{144}Ce	284 d	β^-	318, 7; 185, 2...	133, 5; 80, 1	
^{143}Pr	13,6 d	β^-	933, 9		
^{145}Pm	17,7 a	ϵ		72, 5	
^{146}Pm	5,53 a	ϵ, β^-	794, 9; 161, 7	453, 9; 747, 2...	
^{147}Pm	2,62 a	β^-	224, 1		
^{148m}Pm	41,3 d	β^-, IT	411, 8; 510, 3...	550, 3; 630, 0...	
^{147}Nd	11,0 d	β^-	804, 9; 364, 9...	91, 1; 531, 0...	
^{145}Sm	340 d	ϵ		61, 3	
^{151}Sm	90,0 a	β^-	76, 1		
^{152}Eu	13,5 a	ϵ, β^-	695, 6; 1474, 5...	121, 8; 344, 3...	
^{154}Eu	8,59 a	β^-	570, 9; 248, 8...	123, 1; 1274, 4...	
^{155}Eu	4,76 a	β^-	146, 8; 165, 6	86, 5; 105, 3...	
^{156}Eu	15,2 d	β^-	2451, 0; 485, 0...	811, 8; 89, 0...	
^{153}Gd	240,4 d	ϵ		97, 4; 103, 2...	
^{160}Tb	72,3 d	β^-	570, 6; 869, 1...	879, 4; 298, 6...	
^{166m}Ho	$1,20 \times 10^3$ a	β^-	73, 9; 33, 3...	184, 4; 810, 3...	
^{169}Yb	32,0 d	ϵ		63, 1; 198, 0...	
^{170}Tm	129 d	β^-	968, 0; 883, 8	84, 3	
^{174}Lu	3,31 a	$\epsilon + \beta^+$		76, 5; 1241, 8	
^{172}Hf	1,87 a	ϵ		23, 9; 125, 8...	
^{175}Hf	70,0 d	ϵ		343, 4; 89, 4...	
^{181}Hf	42,4 d	β^-	411, 8; 407, 95	482, 2; 133, 0...	
^{179}Ta	1,82 a	ϵ			
^{182}Ta	114 d	β^-	524, 3; 260, 3...	67, 7; 1221, 4...	

Fortsetzung Tabelle A.1

	$T_{1/2}$	Zerfall	E_{β} [keV]	E_{γ} [keV]	E_{α} [keV]
^{181}W	121 d	ϵ		6,2	
^{185}W	75,1 d	β^{-}	433,0		
^{192}Ir	73,8 d	β^{-}, ϵ	675,1; 538,8...	316,5; 468,1...	
^{195}Au	186 d	ϵ	127,9; 97,0...	98,9	
^{203}Hg	46,6 d	β^{-}	212,6	279,2	
^{204}Tl	3,78 a	β^{-}, ϵ	763,7		
^{210}Pb	22,3 a	β^{-}	16,96; 63,5	46,5	
^{214}Pb	26,8 min	β^{-}	672,1; 728,8...	351,9; 295,2...	
^{207}Bi	31,6 a	$\epsilon + \beta^{+}$		569,7; 1063,6...	
^{208}Bi	$3,68 \times 10^5$ a	ϵ	264,6	2614,5	
^{210}Bi	5,00 d	β^{-}	1162,1		
$^{210\text{m}}\text{Bi}$	$3,04 \times 10^6$ a	α		265,8; 305,0...	4946,0; 4909,0...
^{214}Bi	19,9 min	β^{-}	3272,0; 1542,4...	609,3; 1764,5...	
^{208}Po	2,90 a	α			5114,9
^{210}Po	138,4 d	α			5304,4
^{222}Rn	3,82 d	α			5489,5
^{223}Ra	11,4 d	α		269,5; 154,21...	5716,2; 5606,73...
^{224}Ra	3,66 d	α		241,0	5685,4; 5448,6
^{225}Ra	14,9 d	β^{-}	317,9; 358	40,1	
^{226}Ra	$1,6 \times 10^3$ a	α		186,2	4784,3; 4601,0
^{228}Ra	5,75 a	β^{-}	39,2; 12,8...	13,5	
^{227}Ac	21,7 a	β^{-}, α	44,8		4953,3; 4940,7...
^{228}Ac	6,15 h	β^{-}	1158,0; 1730,9...	911,2; 969,0...	
^{227}Th	18,7 d	α		236,0; 50,1	6038,0; 5977,7...
^{228}Th	10,91 a	α		84,4	5423,15; 5340,4
^{229}Th	$7,34 \times 10^3$ a	α		193,5; 210,9...	4845,3; 4901,0...
^{230}Th	$7,54 \times 10^4$ a	α			4687,0; 4620,5
^{231}Th	25,5 h	β^{-}	288,1; 305,3	25,6	
^{232}Th	$1,41 \times 10^{10}$ a	α			4012,3; 3947,2
^{234}Th	24,1 d	β^{-}	199,1; 106,7...	63,3; 92,38...	
^{231}Pa	$3,27 \times 10^4$ a	α		300,1; 27,4...	5013,8; 4951,3...
^{233}Pa	30,0 d	β^{-}	231,6; 156,3...	312,2; 300,3...	
^{234}Pa	6,70 h	β^{-}	471,6; 642,4...	131,3; 946,0...	
$^{234\text{m}}\text{Pa}$	1,17 min	β^{-}	2268,9; 1224,4		
^{232}U	68,9 a	α			5320,1; 5263,4
^{233}U	$1,59 \times 10^5$ a	α			4824,2; 4783,5...
^{234}U	$2,46 \times 10^5$ a	α			4774,6; 4722,4
^{235}U	$7,04 \times 10^8$ a	α		185,7; 143,8...	4397,8; 4366,1...
^{236}U	$2,34 \times 10^7$ a	α			4494,0; 4445,0
^{238}U	$4,47 \times 10^9$ a	α			4198,0; 4151,0
$^{236\text{m}}\text{Np}$	22,5 h	ϵ, β^{-}	540,0; 495,4...		
^{237}Np	$2,14 \times 10^6$ a	α		29,4; 86,5...	4788,0; 4771,0...

Fortsetzung Tabelle A.1

	$T_{1/2}$	Zerfall	E_{β} [keV]	E_{γ} [keV]	E_{α} [keV]
^{236}Pu	2,86 a	α			5767,7; 5721,0
^{238}Pu	87,7 a	α			5499,0; 5456,3
^{239}Pu	$2,4 \times 10^4$ a	α			5156,6; 5144,3...
^{240}Pu	$6,56 \times 10^3$ a	α			5168,2; 5123,7
^{241}Pu	14,4 a	β^-	20,8		
^{242}Pu	$3,73 \times 10^5$ a	α			4900,5; 4856,2
^{244}Pu	$8,08 \times 10^7$ a	α			4589,0; 4546,0
^{246}Pu	10,8 d	β^-	147,0; 327,0...	43,8; 223,75...	
^{241}Am	432 a	α		59,5; 26,3	5485,6; 5442,8...
^{242m}Am	141 a	IT		48,6	
^{243}Am	$7,37 \times 10^3$ a	α		74,7; 43,5	5275,3; 5233,3...
^{244}Am	10,1 h	β^-	381,9	744,0; 897,85...	
^{242}Cm	163 d	α			6112,7; 6069,4
^{243}Cm	29,1 a	α		277,6; 228,2...	5785,2; 5742,1...
^{244}Cm	18,1 a	α			5804,8; 5762,7
^{245}Cm	$8,50 \times 10^3$ a	α		174,9; 133,0	5362,0; 5303,8
^{246}Cm	$4,73 \times 10^3$ a	α			5386,5; 5343,5
^{247}Cm	$1,56 \times 10^7$ a	α		402,6; 278,0...	4870,0; 5267,0...
^{248}Cm	$3,40 \times 10^5$ a	α, SF			5078,5; 5034,9...
^{250}Cm	9000 a	SF, α, β^-			
^{249}Bk	320 d	β^-	124,0		
^{249}Cf	351 a	α		388,2; 333,4...	5813,3; 5759,5...
^{250}Cf	13,1 a	α			6030,4; 5989,1
^{251}Cf	898 a	α		176,6; 227,0...	5679,3; 5854,0...
^{252}Cf	2,65 a	α, SF			6118,2; 6075,8
^{253}Cf	17,8 d	β^-	288,0		
^{254}Cf	60,5 d	SF			
^{253}Es	20,5 d	α			6632,6; 6592,0
^{254}Es	275,7 d	α		63,0	6428,8; 6358,6...

B

Ergebnisse aus der Reanalyse von realen Abfallfässern mit SGSreco

In Tabelle B.1 sind die Ergebnisse der Reanalyse der 76 Abfallfässer, die im Jahr 2012 mit dem Scansystem Gernod II am Forschungszentrum Jülich vermessen wurden, zusammengefasst. Die Tabelle beinhaltet je Abfallfass die Höhen h , die Matrixdichte und die stoffliche Zusammensetzung aller Presslinge. Zusätzlich sind die Anzahl n und die Summenaktivität der Punktquellen \mathcal{A}_{pkt} sowie die rekonstruierte homogene Aktivität \mathcal{A}_{hom} in einem Pressling und für das gesamte Abfallfass angegeben. Zum Vergleich ist die Aktivität aus der Rekonstruktion mit der konventionellen Methode angegeben.

Tabelle B.1: Zusammenfassung der Ergebnisse aus der Reanalyse realer Abfallgebinde mit SGSreco.

⁶⁰ Co							¹³⁷ Cs		
ID	h [cm]	Dichte [g cm ⁻³]	Mat.	n	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]	n	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]
1	24	2.67	Cu	3	107 ^{+35%} _{-25,3%}	—	0	—	0.823 ^{+19%} _{-19%}
	26	1.44	SiO ₂	3	26.2 ^{+4,97%} _{-9,35%}	—	0	—	0.552 ^{+22,8%} _{-22,8%}
	26	1.22	SiO ₂	2	10.1 ^{+4,96%} _{-4,66%}	1.49 ^{+9,54%} _{-9,54%}	3	3.4 ^{+32,3%} _{-24,4%}	0.252 ^{+8,04%} _{-8,04%}
	gesamt				145 ^{+25,9%} _{-18,8%}			5.03 ^{+22,2%} _{-17%}	
	konventionell				80.6			2.72	
2	25	0.607	CHO + Al	1	0.0511 ^{+35,9%} _{-34,3%}	0.312 ^{+7,62%} _{-7,62%}			
	24	0.755	CHO + Al	0	—	1.18 ^{+2,59%} _{-2,59%}			
	7	0.76	Al	2	4.83 ^{+7,1%} _{-6,63%}	—			
	22	1.28	Al	1	2 ^{+12,2%} _{-11,1%}	0.807 ^{+13,4%} _{-13,4%}			
	gesamt				9.18 ^{+4,75%} _{-4,43%}				
konventionell				7.83					
3	22	0.532	C ₂ H ₃ Cl	4	6.35 ^{+9,6%} _{-7,1%}	3.22 ^{+209%} _{-209%}			
	25	0.727	C ₂ H ₃ Cl	5	7.06 ^{+6,18%} _{-6,11%}	—			
	19	0.71	C ₂ H ₃ Cl	1	0.162 ^{+23,3%} _{-20,7%}	0.133 ^{+5,54%} _{-5,54%}			
	gesamt				16.9 ^{+40%} _{-40%}				
konventionell				34.8					
4	13.4	1.05	CHO	2	1.28 ^{+33,6%} _{-23,5%}	0.5 ^{+10,3%} _{-10,3%}	0	—	0.204 ^{+14,5%} _{-14,5%}
	15.1	0.788	CHO	1	2.17 ^{+26%} _{-31,5%}	0.958 ^{+15,9%} _{-15,9%}	0	—	3.31 ^{+2,36%} _{-2,36%}
	20.5	0.671	CHO	1	1.91 ^{+8,83%} _{-8,15%}	0.145 ^{+5,48%} _{-5,48%}	2	3.25 ^{+4,57%} _{-100%}	0.222 ^{+11,5%} _{-11,5%}
	12.8	0.621	CHO	0	—	0.0129 ^{+24,4%} _{-24,4%}	0	—	0.0775 ^{+11,2%} _{-11,2%}
	gesamt				6.98 ^{+10,7%} _{-11,2%}			7.06 ^{+2,44%} _{-46%}	
konventionell				7.83			5.38		
5	16	0.459	CHO + C ₂ H ₃ Cl	1	0.222 ^{+14,5%} _{-14%}	0.45 ^{+5,6%} _{-5,6%}	0	—	0.0594 ^{+19,9%} _{-19,9%}
	21	0.536	CHO + C ₂ H ₃ Cl	2	4.12 ^{+3,24%} _{-2,96%}	—	0	—	0.117 ^{+30,7%} _{-30,7%}
	25	0.557	CHO + C ₂ H ₃ Cl	5	10.3 ^{+7,76%} _{-5,47%}	—	—	—	—
	16	1.15	CHO + C ₂ H ₃ Cl	2	11.2 ^{+5,96%} _{-5,78%}	0.756 ^{+43,6%} _{-43,6%}	—	—	—
	gesamt				27.1 ^{+4,07%} _{-3,43%}			0.177 ^{+21,4%} _{-21,4%}	
konventionell				23.2			0.541		
6	25	3.01	Fe	4	3.82 ^{+25,9%} _{-23%}	0.163 ^{+9,75%} _{-9,75%}	0	—	0.0482 ^{+41,7%} _{-41,7%}
	19	0.639	C ₂ H ₃ Cl	2	0.0585 ^{+44,1%} _{-46,3%}	0.0631 ^{+4,91%} _{-4,91%}	0	—	0.0109 ^{+53,4%} _{-53,4%}
	16	0.605	C ₂ H ₃ Cl	3	1.02 ^{+4,38%} _{-4,01%}	0.0559 ^{+8,14%} _{-8,14%}	0	—	0.00998 ^{+60,1%} _{-60,1%}
	11	0.694	C ₂ H ₃ Cl	1	0.0159 ^{+155%} _{-93,8%}	0.0185 ^{+4,81%} _{-4,81%}	0	—	0.00591 ^{+67,4%} _{-67,4%}
	gesamt				5.21 ^{+19%} _{-16,9%}			0.075 ^{+29,5%} _{-29,5%}	
konventionell				1.78			0.0707		

Fortsetzung Tabelle B.1

ID	h [cm]	Dichte [g cm ⁻³]	Mat.	⁶⁰ Co			¹³⁷ Cs		
				<i>n</i>	A_{pkt} [MBq]	A_{hom} [MBq]	<i>n</i>	A_{pkt} [MBq]	A_{hom} [MBq]
7	19	0.617	CHO + C ₂ H ₃ Cl	2	4.9 ^{+5,08%} _{-6,52%}	—			
	20	0.501	CHO + C ₂ H ₃ Cl	1	1.68 ^{+14,2%} _{-12,3%}	7.03 ^{+190%} _{-190%}			
	22	0.54	CHO + C ₂ H ₃ Cl	4	152 ^{+15,4%} _{-97,7%}	9.43 ^{+146%} _{-146%}			
	16	0.481	CHO + C ₂ H ₃ Cl	3	4.36 ^{+7,74%} _{-8,75%}	—			
			gesamt konventionell		180 ^{+16,9%} _{-83,4%} 61.1				
8	15	1.19	C ₂ H ₃ Cl	3	22.7 ^{+5,34%} _{-5,45%}	—	0	—	0.297 ^{+30,6%} _{-30,6%}
	24	1.04	C ₂ H ₃ Cl	3	9.41 ^{+3,95%} _{-3,62%}	25.3 ^{+37,6%} _{-37,6%}	0	—	0.347 ^{+30%} _{-30%}
	15	0.861	C ₂ H ₃ Cl	2	13.1 ^{+3,26%} _{-2,98%}	2.29 ^{+29,8%} _{-29,8%}	0	—	0.0994 ^{+66,6%} _{-66,6%}
	16	1.12	C ₂ H ₃ Cl	1	1.52 ^{+10,4%} _{-9,91%}	1.09 ^{+11,2%} _{-11,2%}	0	—	0.0922 ^{+35,6%} _{-35,6%}
			gesamt konventionell		75.4 ^{+12,8%} _{-12,8%} 77.7			0.836 ^{+18,7%} _{-18,7%} 0.540	
9	18	1.39	SiO ₂	0	—	0.0474 ^{+18,1%} _{-18,1%}			
	15	1.42	SiO ₂	1	0.34 ^{+31,6%} _{-24,5%}	—			
	19	1.23	SiO ₂	0	—	0.0368 ^{+18,4%} _{-18,4%}			
	15	1.28	SiO ₂	0	—	0.019 ^{+24,3%} _{-24,3%}			
	16	1.26	SiO ₂	0	—	0.0145 ^{+30,1%} _{-30,1%}			
			gesamt konventionell		0.458 ^{+23,6%} _{-18,4%} 0.369				
10	27	0.687	C ₂ H ₃ Cl	4	34.2 ^{+3,47%} _{-3,17%}	—	0	—	0.491 ^{+16,6%} _{-16,6%}
	20	1.43	C ₂ H ₃ Cl	1	3.44 ^{+6,62%} _{-6,5%}	0.775 ^{+14,4%} _{-14,4%}	0	—	0.233 ^{+27%} _{-27%}
	15	1.26	C ₂ H ₃ Cl	3	22.3 ^{+5,11%} _{-4,62%}	0.544 ^{+10,4%} _{-10,4%}	0	—	0.303 ^{+20,4%} _{-20,4%}
	17	1.17	C ₂ H ₃ Cl	0	—	2.28 ^{+2,26%} _{-2,26%}	0	—	0.121 ^{+26,1%} _{-26,1%}
			gesamt konventionell		63.6 ^{+2,62%} _{-2,39%} 79.9			1.15 ^{+10,8%} _{-10,8%} 1.15	
11	23	1.18	SiO ₂	2	4.59 ^{+15,1%} _{-8,24%}	0.244 ^{+5,63%} _{-5,63%}	1	0.266 ^{+34,3%} _{-29,2%}	0.217 ^{+6,89%} _{-6,89%}
	23	1.43	C ₂ H ₃ Cl	4	9.35 ^{+6,24%} _{-5,25%}	—	0	—	0.35 ^{+15,3%} _{-15,3%}
	17	1.08	C ₂ H ₃ Cl	2	4.68 ^{+15%} _{-14,7%}	—	0	—	0.134 ^{+35,1%} _{-35,1%}
	15	0.883	C ₂ H ₃ Cl	1	2.99 ^{+12,9%} _{-12,1%}	1.47 ^{+25,3%} _{-25,3%}	0	—	0.0681 ^{+55,8%} _{-55,8%}
			gesamt konventionell		23.3 ^{+5,43%} _{-4,55%} 22.4			1.04 ^{+11,9%} _{-10,9%} 0.429	

Fortsetzung Tabelle B.1

ID	h [cm]	Dichte [g cm ⁻³]	Mat.	⁶⁰ Co			¹³⁷ Cs		
				<i>n</i>	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]	<i>n</i>	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]
12	20	0.564	CHO + C ₂ H ₃ Cl	5	49.3 ^{+3,24%} _{-2,97%}	5.64 ^{+3,09%} _{-3,09%}	1	0.121 ^{+41,5%} _{-34,7%}	0.28 ^{+10,2%} _{-10,2%}
	14	0.528	CHO + C ₂ H ₃ Cl	1	0.161 ^{+31,9%} _{-31,1%}	0.395 ^{+25,9%} _{-25,9%}	0	—	0.0712 ^{+25,8%} _{-25,8%}
	20	0.859	CHO + C ₂ H ₃ Cl	3	1.2 ^{+8,53%} _{-7,9%}	—	0	—	0.113 ^{+26%} _{-26%}
	12	0.489	CHO + C ₂ H ₃ Cl	1	2.62 ^{+6,57%} _{-7,4%}	—	0	—	0.14 ^{+26,5%} _{-26,5%}
			gesamt		59.4 ^{+2,74%} _{-2,52%}			0.725 ^{+10,6%} _{-9,89%}	
			konventionell		53.7			0.328	
13	15	1.13	C ₂ H ₃ Cl	5	9.75 ^{+20,3%} _{-24,6%}	—	0	—	0.0938 ^{+24,6%} _{-24,6%}
	25	2.38	Fe	2	0.772 ^{+32,5%} _{-27,7%}	0.203 ^{+4,59%} _{-4,59%}	0	—	0.494 ^{+7,61%} _{-7,61%}
	16	1.17	SiO ₂	1	0.477 ^{+17,7%} _{-16%}	0.0647 ^{+3,84%} _{-3,84%}	0	—	0.0112 ^{+90%} _{-90%}
	13	1.19	SiO ₂	0	—	0.0519 ^{+16%} _{-16%}	0	—	0.0114 ^{+39,1%} _{-39,1%}
	14	1.13	SiO ₂	0	—	0.00947 ^{+32,3%} _{-32,3%}	0	—	0.00305 ^{+74,8%} _{-74,8%}
			gesamt		11.3 ^{+17,6%} _{-21,2%}			0.613 ^{+7,42%} _{-7,42%}	
			konventionell		5.79			0.411	
14	22	0.933	C ₂ H ₃ Cl	3	40.6 ^{+2,87%} _{-2,63%}	7.73 ^{+4,75%} _{-4,75%}	0	—	0.819 ^{+13,2%} _{-13,2%}
	25	1.5	C ₂ H ₃ Cl	5	480 ^{+2,04%} _{-1,87%}	0.584 ^{+3,09%} _{-3,09%}	1	0.99 ^{+23,9%} _{-22,5%}	0.689 ^{+13,3%} _{-13,3%}
	12	0.945	C ₂ H ₃ Cl	1	2.36 ^{+121%} _{-24,6%}	0.342 ^{+46,9%} _{-46,9%}	0	—	0.165 ^{+30,1%} _{-30,1%}
	14	2.29	Cu + C ₅ H ₈ S ₂	0	—	0.439 ^{+7,2%} _{-7,2%}	0	—	0.125 ^{+25,9%} _{-25,9%}
			gesamt		533 ^{+1,93%} _{-1,7%}			2.79 ^{+10,1%} _{-9,7%}	
			konventionell		106			0.871	
15	24	0.575	CHO + C ₂ H ₃ Cl	2	0.605 ^{+23,7%} _{-20,7%}	0.221 ^{+6,84%} _{-6,84%}	0	—	0.0538 ^{+18,5%} _{-18,5%}
	24	0.71	CHO + C ₂ H ₃ Cl	3	0.754 ^{+38,2%} _{-13,2%}	0.614 ^{+7,01%} _{-7,01%}	0	—	0.0849 ^{+17,4%} _{-17,4%}
	18	0.552	CHO + C ₂ H ₃ Cl	2	0.872 ^{+12,7%} _{-11,3%}	0.127 ^{+8,42%} _{-8,42%}	0	—	0.0474 ^{+19,2%} _{-19,2%}
	14	0.916	C ₂ H ₃ Cl	0	—	0.017 ^{+25%} _{-25%}	0	—	0.00866 ^{+37,8%} _{-37,8%}
			gesamt		3.21 ^{+10,7%} _{-6,04%}			0.195 ^{+10,4%} _{-10,4%}	
			konventionell		4.83			0.0709	
16	15	0.803	Es1	1	0.0544 ^{+80,8%} _{-49,5%}	0.0302 ^{+3,79%} _{-3,79%}	0	—	0.0153 ^{+33,3%} _{-33,3%}
	25	2.38	Fe	2	27.9 ^{+24,3%} _{-42,3%}	0.0829 ^{+4,21%} _{-4,21%}	0	—	0.0999 ^{+20,8%} _{-20,8%}
	16	1.17	CaO + SiO ₂	5	1.35 ^{+2,18%} _{-1,99%}	—	0	—	0.0273 ^{+43%} _{-43%}
			gesamt		29.4 ^{+23,1%} _{-40%}			0.143 ^{+17,1%} _{-17,1%}	
			konventionell		4.79			0.138	

Fortsetzung Tabelle B.1

⁶⁰ Co							¹³⁷ Cs		
ID	h [cm]	Dichte [g cm ⁻³]	Mat.	<i>n</i>	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]	<i>n</i>	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]
17	20	2.91	Fe	1	0.0276 ^{+564%} _{-56,3%}	0.371 ^{+4,05%} _{-4,05%}	0	—	0.0704 ^{+27,9%} _{-27,9%}
	21	2.74	Fe	3	8.45 ^{+52,4%} _{-59,7%}	0.566 ^{+7,03%} _{-7,03%}	1	4.96 ^{+62,7%} _{-43,7%}	0.307 ^{+7,44%} _{-7,44%}
	20	1.19	C ₂ H ₃ Cl	3	2.63 ^{+3,62%} _{-3,32%}	4.02 ^{+19,8%} _{-19,8%}	0	—	0.284 ^{+17%} _{-17%}
	21	1.54	C ₂ H ₃ Cl	6	11.1 ^{+13,3%} _{-13,8%}	0.199 ^{+7,27%} _{-7,27%}	0	—	0.158 ^{+33,6%} _{-33,6%}
	gesamt konventionell				27.3 ^{+17,3%} _{-19,5%} 23.2			5.78 ^{+53,8%} _{-37,6%} 0.659	
18	28	1.63	Cu + C ₅ H ₈ S ₂	4	1.93 ^{+9,89%} _{-8,86%}	0.0485 ^{+3,49%} _{-3,49%}	0	—	0.149 ^{+16,9%} _{-16,9%}
	9	1.01	C ₂ H ₃ Cl	1	0.137 ^{+4,55%} _{-4,17%}	—	0	—	0.0341 ^{+48,5%} _{-48,5%}
	12	1.12	C ₂ H ₃ Cl	0	—	0.278 ^{+6,5%} _{-6,5%}	0	—	0.0535 ^{+26,2%} _{-26,2%}
	22	1.42	C ₂ H ₃ Cl	5	7.08 ^{+7,75%} _{-6,83%}	1.24 ^{+3,33%} _{-3,33%}	0	—	0.16 ^{+28,7%} _{-28,7%}
	13	1.15	C ₂ H ₃ Cl	1	0.611 ^{+92,7%} _{-28,7%}	—	0	—	0.0503 ^{+45,7%} _{-45,7%}
gesamt konventionell				11.3 ^{+7,17%} _{-4,8%} 12.3			0.447 ^{+13,7%} _{-13,7%} 0.387		
19	15	1.13	Fe	6	8.09 ^{+53,6%} _{-14%}	—			
	25	2.38	Fe	3	1.12 ^{+29,3%} _{-117%}	0.0678 ^{+3,56%} _{-3,56%}			
	16	1.17	Cu	0	—	0.0435 ^{+15,4%} _{-15,4%}			
	13	1.19	Cu	0	—	0.0888 ^{+10,7%} _{-10,7%}			
gesamt konventionell				9.41 ^{+46,2%} _{-18,5%} 10.1					
20	17	1.33	Cu + C ₅ H ₈ S ₂	1	0.0856 ^{+51,4%} _{-79,5%}	—			
	21	0.67	C ₂ H ₃ Cl	4	1.43 ^{+16,4%} _{-18,1%}	0.344 ^{+3,48%} _{-3,48%}			
	20	0.779	C ₂ H ₃ Cl	2	0.104 ^{+38,6%} _{-34,5%}	0.0779 ^{+4,03%} _{-4,03%}			
	18	0.622	C ₂ H ₃ Cl	1	0.0702 ^{+50%} _{-39,1%}	0.0599 ^{+3,86%} _{-3,86%}			
gesamt konventionell				2.17 ^{+11,3%} _{-12,5%} 3.02					
21	10	1.08	C ₂ H ₃ Cl	1	11.8 ^{+6,52%} _{-6,59%}	0.396 ^{+47,1%} _{-47,1%}			
	9	1.33	C ₂ H ₃ Cl	1	0.887 ^{+47,4%} _{-28,1%}	—			
	15	0.659	C ₂ H ₃ Cl	2	0.199 ^{+65,2%} _{-36,6%}	0.0805 ^{+29,7%} _{-29,7%}			
	20	0.594	C ₂ H ₃ Cl	4	4.41 ^{+17,1%} _{-14,8%}	0.382 ^{+4,39%} _{-4,39%}			
	12	0.492	C ₂ H ₃ Cl	0	—	1.01 ^{+2,65%} _{-2,65%}			
	13	0.644	CHO + C ₂ H ₃ Cl	1	1.85 ^{+6,5%} _{-12,4%}	0.00972 ^{+351%} _{-351%}			
gesamt konventionell				21 ^{+5,64%} _{-5,18%} 10.5					

Fortsetzung Tabelle B.1

ID	h [cm]	Dichte [g cm ⁻³]	Mat.	⁶⁰ Co			¹³⁷ Cs		
				<i>n</i>	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]	<i>n</i>	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]
22	20	1.12	C ₂ H ₃ Cl	5	5.39 ^{+10,5%} _{-8,64%}	—	2	1.55 ^{+17%} _{-16%}	0.267 ^{+8,93%} _{-8,93%}
	24	1.23	C ₂ H ₃ Cl	5	3.46 ^{+15,6%} _{-20%}	—	1	0.986 ^{+16,4%} _{-14,9%}	0.136 ^{+6,4%} _{-6,4%}
	20	0.764	C ₂ H ₃ Cl	2	1.27 ^{+8,77%} _{-8,19%}	0.247 ^{+7,55%} _{-7,55%}	0	—	0.0827 ^{+21,1%} _{-21,1%}
	18	1.09	SiO ₂	0	—	0.0689 ^{+12,8%} _{-12,8%}	0	—	0.0339 ^{+23,9%} _{-23,9%}
			gesamt		10.4 ^{+7,6%} _{-8,07%}			3.06 ^{+10,2%} _{-9,51%}	
			konventionell		15.3			2.51	
23	17	1.05	C ₂ H ₃ Cl	2	1.63 ^{+14,5%} _{-12%}	0.194 ^{+10,2%} _{-10,2%}	0	—	0.161 ^{+12,9%} _{-12,9%}
	13	0.941	C ₂ H ₃ Cl	3	2.08 ^{+12,7%} _{-11,7%}	0.311 ^{+27,3%} _{-27,3%}	0	—	0.215 ^{+11,8%} _{-11,8%}
	22	1	C ₂ H ₃ Cl	2	0.526 ^{+3,65%} _{-3,35%}	0.455 ^{+10,3%} _{-10,3%}	0	—	0.0719 ^{+22,9%} _{-22,9%}
	10	0.764	C ₂ H ₃ Cl	3	0.818 ^{+3,14%} _{-2,88%}	0.218 ^{+16,6%} _{-16,6%}	0	—	0.101 ^{+13,1%} _{-13,1%}
	16	1.06	C ₂ H ₃ Cl	0	—	0.0791 ^{+12%} _{-12%}	0	—	0.0129 ^{+47,7%} _{-47,7%}
			gesamt		6.31 ^{+5,89%} _{-5,25%}			0.562 ^{+7,04%} _{-7,04%}	
			konventionell		4.48			0.227	
24	22	1.42	C ₂ H ₃ Cl	4	10.7 ^{+2,62%} _{-2,4%}	—	0	—	0.406 ^{+13,6%} _{-13,6%}
	16	1.07	C ₂ H ₃ Cl	2	0.575 ^{+24,4%} _{-16,7%}	0.184 ^{+5,56%} _{-5,56%}	0	—	0.0682 ^{+25%} _{-25%}
	16	0.605	C ₂ H ₃ Cl	0	—	0.106 ^{+8,1%} _{-8,1%}	0	—	0.0671 ^{+11,8%} _{-11,8%}
	19	0.573	C ₂ H ₃ Cl	0	—	0.0434 ^{+12,1%} _{-12,1%}	0	—	0.0215 ^{+19%} _{-19%}
	11	0.485	C ₂ H ₃ Cl	0	—	0.0204 ^{+17,2%} _{-17,2%}	0	—	0.0186 ^{+20,3%} _{-20,3%}
			gesamt		11.6 ^{+2,7%} _{-2,36%}			0.581 ^{+10,1%} _{-10,1%}	
			konventionell		9.42			0.349	
25	19	0.963	CH	1	21 ^{+5,31%} _{-4,95%}	0.268 ^{+6,61%} _{-6,61%}	0	—	0.363 ^{+15,7%} _{-15,7%}
	19	0.886	CH	0	—	0.261 ^{+5,88%} _{-5,88%}	1	0.261 ^{+24,5%} _{-21,6%}	0.0925 ^{+8,38%} _{-8,38%}
	20	0.934	CH	1	0.0872 ^{+76,8%} _{-52,4%}	0.231 ^{+23,6%} _{-23,6%}	0	—	0.132 ^{+31,9%} _{-31,9%}
	10	0.716	CH	2	16.6 ^{+5,47%} _{-5,49%}	—	0	—	0.0315 ^{+228%} _{-228%}
	10	0.514	CHO + C ₂ H ₃ Cl	0	—	6.03 ^{+1,24%} _{-1,24%}	0	—	0.0598 ^{+59,3%} _{-59,3%}
			gesamt		44.4 ^{+3,24%} _{-3,12%}			0.94 ^{+13,3%} _{-12,9%}	
			konventionell		32.4			0.481	
26	30	0.683	CHO + C ₂ H ₃ Cl	5	10.5 ^{+7,74%} _{-5,25%}	0.502 ^{+49%} _{-49%}	0	—	0.233 ^{+20,6%} _{-20,6%}
	20	0.575	CHO + C ₂ H ₃ Cl	2	28.1 ^{+4,43%} _{-4,11%}	3.31 ^{+56%} _{-56%}	0	—	0.553 ^{+16,7%} _{-16,7%}
	20	0.501	CHO + C ₂ H ₃ Cl	3	50.8 ^{+3,54%} _{-3,34%}	—	0	—	0.676 ^{+15,2%} _{-15,2%}
	11	0.852	CHO	0	—	4.04 ^{+1,83%} _{-1,83%}	0	—	0.253 ^{+24,1%} _{-24,1%}
			gesamt		97.2 ^{+3,08%} _{-2,91%}			1.72 ^{+9,23%} _{-9,23%}	
			konventionell		233			0.419	

Fortsetzung Tabelle B.1

⁶⁰ Co						¹³⁷ Cs			
ID	h [cm]	Dichte [g cm ⁻³]	Mat.	n	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]	n	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]
27	28	0.597	CHO + C ₂ H ₃ Cl	4	17.4 ^{+3,94%} _{-3,82%}	19.7 ^{+119%} _{-119%}	0	—	0.318 ^{+23,7%} _{-23,7%}
	14	0.706	CHO	1	0.212 ^{+20,7%} _{-25,5%}	0.0875 ^{+14,1%} _{-14,1%}	2	0.646 ^{+48,2%} _{-48,4%}	0.173 ^{+12,3%} _{-12,3%}
	18	0.683	CHO	2	0.118 ^{+31,5%} _{-28,8%}	—	0	—	0.435 ^{+4,56%} _{-4,56%}
	11	0.521	CHO	0	—	0.0186 ^{+19,5%} _{-19,5%}	0	—	0.00806 ^{+48,7%} _{-48,7%}
	gesamt				37.6 ^{+62,2%} _{-62,2%}			1.58 ^{+20,4%} _{-20,4%}	
	konventionell				57.5			1.00	
28	16	0.834	CHO	2	17.6 ^{+10,6%} _{-9,42%}	1.28 ^{+22,2%} _{-22,2%}	0	—	0.395 ^{+16,3%} _{-16,3%}
	22	1.78	CHO	4	7.24 ^{+86,6%} _{-63,8%}	0.969 ^{+10,8%} _{-10,8%}	0	—	0.338 ^{+17,2%} _{-17,2%}
	16	0.542	CHO	2	4.46 ^{+3,49%} _{-3,2%}	—	0	—	0.218 ^{+16,2%} _{-16,2%}
	10	0.716	CHO	0	—	2.32 ^{+2,26%} _{-2,26%}	0	—	0.105 ^{+28,3%} _{-28,3%}
	20	0.492	CHO	2	0.537 ^{+10,7%} _{-10,1%}	—	0	—	0.0499 ^{+23%} _{-23%}
	gesamt				34.4 ^{+19,1%} _{-14,3%}			1.11 ^{+8,94%} _{-8,94%}	
konventionell				34.3			0.527		
29	22	0.726	C ₂ H ₃ Cl	2	62.2 ^{+3,82%} _{-3,55%}	1.31 ^{+19,5%} _{-19,5%}			
	13	2.95	Fe	1	0.642 ^{+106%} _{-64,5%}	0.727 ^{+11,7%} _{-11,7%}			
	16	2.66	Fe	2	10.9 ^{+16,9%} _{-23,3%}	—			
	13	2.44	Fe	2	18 ^{+14,6%} _{-13,4%}	—			
	14	0.609	CHO	0	—	1.36 ^{+2,58%} _{-2,58%}			
	gesamt				95.2 ^{+4,26%} _{-4,39%}				
konventionell				304					
30	20	0.794	C ₂ H ₃ Cl	2	36.4 ^{+3,59%} _{-3,34%}	2.78 ^{+34%} _{-34%}	0	—	0.603 ^{+19,1%} _{-19,1%}
	21	0.92	C ₂ H ₃ Cl	1	3.78 ^{+10,8%} _{-11,5%}	0.878 ^{+10,6%} _{-10,6%}	0	—	0.344 ^{+21,5%} _{-21,5%}
	29	1.33	C ₂ H ₃ Cl	5	46.4 ^{+15,2%} _{-13,5%}	9.49 ^{+73,8%} _{-73,8%}	0	—	1.83 ^{+11,1%} _{-11,1%}
	11	1.06	CHO	1	11.5 ^{+17,3%} _{-15,4%}	—	1	1.34 ^{+27,6%} _{-24%}	
	gesamt				111 ^{+9,23%} _{-8,72%}			4.11 ^{+10,8%} _{-9,82%}	
konventionell				156			0.925		
31	33	0.847	C ₂ H ₃ Cl	3	29.8 ^{+3,26%} _{-3,07%}	1.92 ^{+19,8%} _{-19,8%}			
	23	0.525	CHO + C ₂ H ₃ Cl	3	0.942 ^{+13%} _{-11,8%}	—			
	18	0.581	CHO + C ₂ H ₃ Cl	1	0.227 ^{+17,4%} _{-16%}	0.126 ^{+6,05%} _{-6,05%}			
gesamt				33 ^{+3,19%} _{-3,02%}					
konventionell				66.8					

Fortsetzung Tabelle B.1

ID	h [cm]	Dichte [g cm ⁻³]	Mat.	⁶⁰ Co			¹³⁷ Cs		
				<i>n</i>	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]	<i>n</i>	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]
32	33	0.821	C ₂ H ₃ Cl	2	0.336 ^{+37%} _{-39,1%}	0.178 ^{+4,02%} _{-4,02%}			
	32	0.942	C ₂ H ₃ Cl	1	0.0828 ^{+38,6%} _{-34%}	0.4 ^{+5,16%} _{-5,16%}			
	13	0.674	C ₂ H ₃ Cl	3	0.999 ^{+15,7%} _{-14,5%}	0.292 ^{+5,94%} _{-5,94%}			
			gesamt		2.29 ^{+8,94%} _{-8,73%}				
			konventionell		3.52				
33	19	0.721	CHO	2	0.525 ^{+17,6%} _{-15,2%}	0.16 ^{+9,63%} _{-9,63%}	0	—	0.0861 ^{+14,9%} _{-14,9%}
	20	0.692	CHO	2	0.262 ^{+26,7%} _{-45,5%}	0.0968 ^{+11%} _{-11%}	0	—	0.0453 ^{+21,5%} _{-21,5%}
	13	0.647	CHO	2	0.0978 ^{+99%} _{-56,7%}	0.0719 ^{+13,3%} _{-13,3%}	0	—	0.0475 ^{+17,8%} _{-17,8%}
	22	0.645	CHO	1	0.119 ^{+26%} _{-22,7%}	0.0597 ^{+4,04%} _{-4,04%}	0	—	0.0762 ^{+11,5%} _{-11,5%}
			gesamt		1.39 ^{+11,2%} _{-11,3%}			0.255 ^{+7,92%} _{-7,92%}	
			konventionell		1.70			0.102	
34	18	0.782	C ₂ H ₃ Cl	4	13.3 ^{+43,9%} _{-39,5%}	—	1	0.101 ^{+86,6%} _{-75,2%}	0.501 ^{+12,1%} _{-12,1%}
	19	0.597	Fe	1	0.996 ^{+13,8%} _{-12,9%}	0.289 ^{+14,9%} _{-14,9%}	0	—	0.157 ^{+20,8%} _{-20,8%}
	23	0.963	SiO ₂	1	0.0813 ^{+39,1%} _{-33,2%}	0.185 ^{+4,38%} _{-4,38%}	0	—	0.112 ^{+19,5%} _{-19,5%}
	20	0.909	SiO ₂	0	—	0.0869 ^{+10,6%} _{-10,6%}	0	—	0.0328 ^{+21,8%} _{-21,8%}
			gesamt		15 ^{+39,1%} _{-35,2%}			0.904 ^{+12,5%} _{-11,6%}	
			konventionell		24.9			0.336	
35	40	1.17	C ₂ H ₃ Cl	0	—	0.067 ^{+11,4%} _{-11,4%}			
	30	0.705	C ₂ H ₃ Cl	3	0.98 ^{+29%} _{-3,21%}	0.347 ^{+8,5%} _{-8,5%}			
			gesamt		1.39 ^{+20,5%} _{-3,14%}				
			konventionell		4.18				
36	25	0.776	C ₂ H ₃ Cl	3	2.82 ^{+7,49%} _{-7,09%}	0.996 ^{+14%} _{-14%}			
	17	0.881	C ₂ H ₃ Cl	3	1.01 ^{+14,8%} _{-11,1%}	1.04 ^{+8,4%} _{-8,4%}			
	21	0.672	C ₂ H ₃ Cl	5	3.67 ^{+3,29%} _{-3,02%}	—			
	20	0.781	CHO + C ₂ H ₃ Cl	2	1.69 ^{+4,11%} _{-3,76%}	—			
			gesamt		11.2 ^{+3%} _{-2,76%}				
			konventionell		21.8				
37	13.6	0.514	C ₂ H ₃ Cl	0	—	0.000341 ^{+244%} _{-244%}	0	—	0.00133 ^{+70,7%} _{-70,7%}
	10.6	0.33	C ₂ H ₃ Cl	0	—	0.000887 ^{+108%} _{-108%}	0	—	0.000585 ^{+100%} _{-100%}
	10.8	0.411	C ₂ H ₃ Cl	0	—	0.0115 ^{+25,3%} _{-25,3%}	0	—	0.00337 ^{+80,3%} _{-80,3%}
	14.4	0.63	C ₂ H ₃ Cl	1	0.127 ^{+53%} _{-35,8%}	0.0154 ^{+3,44%} _{-3,44%}	1	0.119 ^{+78,3%} _{-46,7%}	0.0209 ^{+5,4%} _{-5,4%}
	13.2	0.608	CHO	0	—	0.0529 ^{+11,7%} _{-11,7%}	0	—	0.0512 ^{+13,8%} _{-13,8%}
	14	0.599	CHO	0	—	0.000599 ^{+70,7%} _{-70,7%}	0	—	0.00116 ^{+103%} _{-103%}
			gesamt		0.208 ^{+32,4%} _{-22%}			0.197 ^{+47,3%} _{-28,4%}	
			konventionell		0.885			0.880	

Fortsetzung Tabelle B.1

⁶⁰ Co						¹³⁷ Cs			
ID	h [cm]	Dichte [g cm ⁻³]	Mat.	n	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]	n	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]
38	42	0.978	C ₂ H ₃ Cl	5	15.3 ^{+4,25%} _{-4,05%}	—			
	33	0.802	CHO + C ₂ H ₃ Cl	5	10.4 ^{+4,44%} _{-4,23%}	—			
	10	1.11	C ₂ H ₃ Cl	0	—	0.268 ^{+9,3%} _{-9,3%}			
	gesamt			25.9 ^{+3,07%} _{-2,93%}					
konventionell			63.8						
39	21	0.969	C ₂ H ₃ Cl	3	2.75 ^{+36,5%} _{-28,5%}	0.263 ^{+6,4%} _{-6,4%}	0	—	0.185 ^{+20,3%} _{-20,3%}
	15	0.657	C ₂ H ₃ Cl	3	2.28 ^{+21,7%} _{-19%}	—	1	0.0474 ^{+80,1%} _{-89,8%}	0.167 ^{+9,31%} _{-9,31%}
	9	0.538	C ₂ H ₃ Cl	2	3.98 ^{+12,7%} _{-10%}	1.3 ^{+262%} _{-262%}	0	—	0.228 ^{+25,5%} _{-25,5%}
	25	0.795	C ₂ H ₃ Cl	8	4.69 ^{+6,06%} _{-6,59%}	—	3	0.469 ^{+32,9%} _{-53,1%}	0.299 ^{+8,4%} _{-8,4%}
	11	0.915	CHO	0	—	0.577 ^{+5,17%} _{-5,17%}	0	—	0.458 ^{+6,88%} _{-6,88%}
	gesamt			15.8 ^{+23%} _{-22,5%}			1.85 ^{+9,63%} _{-14,3%}		
konventionell			28.5			0.862			
40	29	0.768	C ₂ H ₃ Cl	2	0.253 ^{+4,55%} _{-4,17%}	1.2 ^{+6,9%} _{-6,9%}	0	—	0.418 ^{+5,98%} _{-5,98%}
	45	1.14	C ₂ H ₃ Cl	2	0.929 ^{+25,2%} _{-29,5%}	0.316 ^{+4,15%} _{-4,15%}	2	2.16 ^{+4,5%} _{-4,12%}	0.186 ^{+5,6%} _{-5,6%}
	9	0.587	CHO	0	—	0.0705 ^{+12,8%} _{-12,8%}	0	—	0.0219 ^{+30,1%} _{-30,1%}
	gesamt			2.77 ^{+9,02%} _{-10,4%}			2.79 ^{+3,63%} _{-3,35%}		
konventionell			4.06			1.73			
41	40	1.24	C ₂ H ₃ Cl	1	0.366 ^{+29,2%} _{-22,2%}	0.11 ^{+3,37%} _{-3,37%}	0	—	0.0887 ^{+14,6%} _{-14,6%}
	20	0.669	CHO	2	2.23 ^{+8,88%} _{-9,48%}	—	0	—	0.2 ^{+14,4%} _{-14,4%}
	15	0.844	CHO	0	—	0.558 ^{+4,13%} _{-4,13%}	0	—	0.114 ^{+15,3%} _{-15,3%}
	gesamt			3.26 ^{+6,93%} _{-6,97%}			0.402 ^{+8,94%} _{-8,94%}		
konventionell			6.78			0.243			
42	38.2	0.794	C ₂ H ₃ Cl	6	7.99 ^{+2,53%} _{-2,32%}	2.3 ^{+12,5%} _{-12,5%}			
	34	0.699	C ₂ H ₃ Cl	3	0.985 ^{+30,2%} _{-29,9%}	0.194 ^{+4,5%} _{-4,5%}			
	18.2	1.62	SiO ₂	0	—	0.0293 ^{+22,9%} _{-22,9%}			
gesamt			11.5 ^{+4%} _{-3,92%}						
konventionell			11.5						
43	56.7	0.782	C ₅ H ₈ S ₂	7	4.33 ^{+2,26%} _{-2,07%}	1.4 ^{+13,2%} _{-13,2%}			
	31.1	0.675	C ₅ H ₈ S ₂	3	9.71 ^{+4,83%} _{-4,6%}	—			
gesamt			15.4 ^{+3,33%} _{-3,19%}						
konventionell			46.2						

Fortsetzung Tabelle B.1

ID	h [cm]	Dichte [g cm ⁻³]	Mat.	n	⁶⁰ Co		n	¹³⁷ Cs	
					\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]		\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]
44	37.8	0.832	C ₂ H ₃ Cl	8	2.95 ^{+63,8%} _{-19,3%}	0.188 ^{+22,1%} _{-22,1%}			
	39.6	0.816	C ₂ H ₃ Cl	1	1.98 ^{+6,31%} _{-5,91%}	0.402 ^{+4,85%} _{-4,85%}			
			gesamt		5.52 ^{+34,2%} _{-10,6%}				
			konventionell		9.73				
45	43.5	0.807	C ₂ H ₃ Cl	6	18.5 ^{+5,82%} _{-5,46%}	0.915 ^{+39,4%} _{-39,4%}			
	17.5	2.11	Fe	1	1.64 ^{+28,8%} _{-21,9%}	0.295 ^{+5,42%} _{-5,42%}			
	27.2	1.14	CH	0	—	0.15 ^{+8,78%} _{-8,78%}			
			gesamt		21.5 ^{+5,71%} _{-5,26%}				
46	50.1	0.985	C ₂ H ₃ Cl	6	21.7 ^{+6,73%} _{-6,27%}	0.957 ^{+7,02%} _{-7,02%}			
	26.8	2.82	Fe	1	0.278 ^{+52,4%} _{-43,1%}	0.17 ^{+3,48%} _{-3,48%}			
			gesamt		23.1 ^{+6,36%} _{-5,91%}				
			konventionell		90.1				
47	35.3	1.07	C ₂ H ₃ Cl	6	27.9 ^{+3,9%} _{-9,62%}	2.96 ^{+12,6%} _{-12,6%}			
	38.3	0.895	C ₂ H ₃ Cl	4	6.73 ^{+104%} _{-31,5%}	0.489 ^{+7,05%} _{-7,05%}			
			gesamt		38.1 ^{+18,6%} _{-9,03%}				
			konventionell		32.1				
48	33.5	0.736	C ₂ H ₃ Cl	5	11 ^{+2,36%} _{-2,16%}	4.67 ^{+30,1%} _{-30,1%}			
	30.6	0.792	C ₂ H ₃ Cl	7	11.8 ^{+2,11%} _{-5,6%}	—			
	28.2	0.804	C ₂ H ₃ Cl	1	0.183 ^{+26,3%} _{-67,1%}	0.0216 ^{+3,46%} _{-3,46%}			
			gesamt		27.7 ^{+5,25%} _{-5,69%}				
49	34.9	0.634	C ₂ H ₃ Cl	5	15.6 ^{+4,62%} _{-4,6%}	13.4 ^{+60,4%} _{-60,4%}			
	30.1	0.709	C ₂ H ₃ Cl	4	3.79 ^{+9,64%} _{-9,8%}	1.12 ^{+15,5%} _{-15,5%}			
	17.6	2.82	C ₂ H ₃ Cl	1	0.125 ^{+35,2%} _{-31%}	0.0652 ^{+3,27%} _{-3,27%}			
			gesamt		34.1 ^{+23,9%} _{-23,9%}				
50	17.8	2.5	Fe	3	10.5 ^{+12,6%} _{-13,7%}	—	1	1.46 ^{+149%} _{-99,9%}	—
	27.9	0.875	CHO	2	0.362 ^{+24,9%} _{-50,2%}	0.269 ^{+8,87%} _{-8,87%}	3	0.578 ^{+82,2%} _{-69,7%}	0.107 ^{+6,86%} _{-6,86%}
	21	0.682	CHO	0	—	0.2 ^{+5,91%} _{-5,91%}	0	—	0.0626 ^{+12,6%} _{-12,6%}
	21.8	0.599	CHO	0	—	0.0283 ^{+14%} _{-14%}	0	—	0.0116 ^{+21%} _{-21%}
			gesamt		11.4 ^{+11,7%} _{-12,8%}			2.22 ^{+101%} _{-68,2%}	
			konventionell		5.77			1.50	

Fortsetzung Tabelle B.1

ID	h [cm]	Dichte [g cm ⁻³]	Mat.	⁶⁰ Co			¹³⁷ Cs		
				<i>n</i>	A_{pkt} [MBq]	A_{hom} [MBq]	<i>n</i>	A_{pkt} [MBq]	A_{hom} [MBq]
51	11	1.85	Fe	1	0.253 ^{+86,1%} _{-50,1%}	—	0	—	0.136 ^{+15,9%} _{-15,9%}
	21.7	2.72	Fe	1	1.34 ^{+17,4%} _{-15,6%}	—	0	—	0.179 ^{+15,8%} _{-15,8%}
	25.8	0.782	C ₂ H ₃ Cl	0	—	0.196 ^{+6,84%} _{-6,84%}	0	—	0.0677 ^{+14,9%} _{-14,9%}
	30.3	0.872	C ₂ H ₃ Cl	1	0.0889 ^{+26,5%} _{-22,6%}	—	0	—	0.031 ^{+22,7%} _{-22,7%}
			gesamt		1.88 ^{+17%} _{-13,1%}			0.414 ^{+9,1%} _{-9,1%}	
			konventionell		1.07			0.207	
52	20.3	0.896	C ₂ H ₃ Cl	1	0.211 ^{+25,7%} _{-22,1%}	0.164 ^{+5,57%} _{-5,57%}			
	18.5	0.678	C ₂ H ₃ Cl	0	—	0.0219 ^{+19,9%} _{-19,9%}			
	28.2	2.56	Cu + C ₅ H ₈ S ₂	0	—	0.0548 ^{+22,3%} _{-22,3%}			
	20.1	1.59	Cu + C ₅ H ₈ S ₂	0	—	0.0032 ^{+53,9%} _{-53,9%}			
			gesamt		0.454 ^{+12,4%} _{-10,9%}				
			konventionell		1.62				
53	23.4	0.655	C ₅ H ₈ S ₂	1	0.31 ^{+26,8%} _{-25,7%}	0.0164 ^{+3,23%} _{-3,23%}			
	32.3	0.625	C ₅ H ₈ S ₂	0	—	0.0334 ^{+13,6%} _{-13,6%}			
	28.8	0.666	C ₅ H ₈ S ₂	0	—	0.0684 ^{+10,7%} _{-10,7%}			
			gesamt		0.428 ^{+19,5%} _{-18,7%}				
			konventionell		0.281				
54	33.1	0.57	C ₅ H ₈ S ₂	4	5.36 ^{+2,6%} _{-2,38%}	0.126 ^{+6,73%} _{-6,73%}			
	24	0.476	C ₅ H ₈ S ₂	0	—	0.0312 ^{+14,3%} _{-14,3%}			
	24.4	0.55	C ₅ H ₈ S ₂	0	—	0.0107 ^{+24,7%} _{-24,7%}			
			gesamt		5.53 ^{+2,52%} _{-2,31%}				
			konventionell		5.57				
55	28.4	1.11	SiO ₂	1	3.5 ^{+5,99%} _{-5,68%}	0.0906 ^{+3,77%} _{-3,77%}	0	—	2.52 ^{+3,17%} _{-3,17%}
	12.4	0.875	CHO	2	3.75 ^{+11,4%} _{-11,5%}	—	2	1.49 ^{+14,4%} _{-14,8%}	—
	19.5	0.858	CHO	3	4.31 ^{+9,51%} _{-9,4%}	—	3	0.97 ^{+19,2%} _{-29,2%}	—
	18.3	0.679	CHO	2	1.62 ^{+28,4%} _{-25,9%}	0.257 ^{+22,3%} _{-22,3%}	2	0.537 ^{+64,1%} _{-41,9%}	0.185 ^{+15,3%} _{-15,3%}
	15.6	0.627	CHO	0	—	—	2	0.537 ^{+64,1%} _{-41,9%}	0.185 ^{+15,3%} _{-15,3%}
			gesamt		13.5 ^{+5,78%} _{-5,57%}			5.73 ^{+6,02%} _{-9,64%}	
			konventionell		38.6			6.37	

Fortsetzung Tabelle B.1

⁶⁰ Co							¹³⁷ Cs		
ID	h [cm]	Dichte [g cm ⁻³]	Mat.	n	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]	n	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]
56	20.1	0.689	CHO	2	3.51 ^{+6,14%} _{-5,4%}	—	1	0.621 ^{+14,7%} _{-14%}	0.0788 ^{+14,3%} _{-14,3%}
	16.5	0.481	CHO	2	0.753 ^{+11,3%} _{-10,5%}	—	2	0.457 ^{+17,8%} _{-15,8%}	0.228 ^{+16,9%} _{-16,9%}
	15	0.594	CHO	1	0.423 ^{+13,1%} _{-12%}	—	0	—	0.278 ^{+7,04%} _{-7,04%}
	19.3	0.502	CHO	2	1.42 ^{+6,74%} _{-6,36%}	0.441 ^{+14%} _{-14%}	0	—	0.332 ^{+6,9%} _{-6,9%}
	18.1	0.637	CHO	0	—	0.0463 ^{+12,8%} _{-12,8%}	0	—	0.0213 ^{+29,1%} _{-29,1%}
	gesamt				6.6 ^{+4%} _{-3,61%}		2.02 ^{+6,55%} _{-6,14%}		
konventionell				8.31		2.18			
57	20.8	1.12	CaSiO3	0	—	0.00174 ^{+114%} _{-114%}	0	—	0.00894 ^{+34,7%} _{-34,7%}
	22.6	1.12	CaSiO3	0	—	0.00643 ^{+72,5%} _{-72,5%}	0	—	0.189 ^{+9,27%} _{-9,27%}
	20.4	0.979	CaSiO3	0	—	0.00599 ^{+77,1%} _{-77,1%}	0	—	0.215 ^{+8,28%} _{-8,28%}
	22.4	1.07	CaSiO3	0	—	0.000403 ^{+100%} _{-100%}	0	—	0.00518 ^{+57,4%} _{-57,4%}
	14.1	1.21	Fe	0	—	—	0	—	—
	gesamt				0.0146 ^{+47,2%} _{-47,2%}		0.419 ^{+6,06%} _{-6,06%}		
konventionell				0.039		0.377			
58	13.9	1.67	Fe	0	—	—	0	—	0.00411 ^{+74,8%} _{-74,8%}
	13.3	1.71	Fe	0	—	0.000631 ^{+392%} _{-392%}	0	—	0.00687 ^{+44,8%} _{-44,8%}
	16.3	0.971	CaSiO3	0	—	0.0033 ^{+102%} _{-102%}	0	—	0.0073 ^{+47,7%} _{-47,7%}
	21.4	1.16	CaSiO3	0	—	0.00219 ^{+119%} _{-119%}	0	—	0.00547 ^{+79,9%} _{-79,9%}
	15.1	0.77	CaSiO3	0	—	—	0	—	0.00198 ^{+57,7%} _{-57,7%}
	12.1	1.39	Fe	0	—	—	0	—	—
	12.3	1.26	Fe	0	—	—	0	—	—
	gesamt				0.00611 ^{+80,3%} _{-80,3%}		0.0257 ^{+27,9%} _{-27,9%}		
konventionell				0.026		0.0401			
59	28.1	2.72	C ₂ H ₃ Cl	1	2.48 ^{+21,1%} _{-20,8%}	0.607 ^{+5,43%} _{-5,43%}			
	18.8	1.16	CaSiO3	0	—	0.0202 ^{+23,8%} _{-23,8%}			
	20.8	1.08	CaSiO3	0	—	0.0101 ^{+30,7%} _{-30,7%}			
	20	1.09	CaSiO3	0	—	0.00301 ^{+53,4%} _{-53,4%}			
gesamt				3.12 ^{+16,8%} _{-16,6%}					
konventionell				0.608					
60	24	1.16	CaSiO3	0	—	0.00141 ^{+142%} _{-142%}			
	23	1.14	CaSiO3	0	—	0.00899 ^{+39,5%} _{-39,5%}			
	16.7	0.741	CaSiO3	0	—	0.00129 ^{+115%} _{-115%}			
	22.8	1.19	CaSiO3	0	—	—			
gesamt				0.0117 ^{+37,1%} _{-37,1%}					
konventionell				0.0123					

Fortsetzung Tabelle B.1

⁶⁰ Co						¹³⁷ Cs			
ID	h [cm]	Dichte [g cm ⁻³]	Mat.	n	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]	n	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]
61	24	1.05	CaSiO3	1	0.0753 ^{+31,9%} _{-26,3%}	0.00562 ^{+3,19%} _{-3,19%}			
	22.8	0.668	CHO	0	—	0.0132 ^{+24,9%} _{-24,9%}			
	23	0.579	CHO	0	—	0.101 ^{+8,77%} _{-8,77%}			
	26.1	0.675	CHO	1	0.521 ^{+14,3%} _{-12,8%}	—			
	gesamt				0.716 ^{+11%} _{-9,78%}				
konventionell				0.874					
62	43.4	2.48	SiO ₂				1	1.44 ^{+71,4%} _{-59,9%}	3.09 ^{+9,77%} _{-9,77%}
	42.2	2.54	SiO ₂				1	0.794 ^{+100%} _{-95,9%}	2.31 ^{+8,53%} _{-8,53%}
	gesamt							7.64 ^{+17,7%} _{-15,8%}	
konventionell							6.3		
63	17.3	2.68	Fe	2			2	6.3 ^{+38,9%} _{-42,6%}	0.033 ^{+5,93%} _{-5,93%}
	6.6	1.54	C ₂ H ₃ Cl	1			1	0.14 ^{+42,2%} _{-37%}	0.151 ^{+10,5%} _{-10,5%}
	10.8	0.603	C ₂ H ₃ Cl	0			0	—	0.0471 ^{+16,3%} _{-16,3%}
	7.6	0.859	C ₂ H ₃ Cl	0			0	—	0.0367 ^{+27%} _{-27%}
	17.7	2.78	C ₂ H ₃ Cl	0			0	—	0.3 ^{+21,8%} _{-21,8%}
	12	2.43	C ₂ H ₃ Cl	0			0	—	0.219 ^{+18,9%} _{-18,9%}
	gesamt							7.22 ^{+33,9%} _{-37,1%}	
konventionell							2.84		
64	16.1	1.33	C ₂ H ₃ Cl	2	0.499 ^{+29,6%} _{-19,2%}	0.23 ^{+14,9%} _{-14,9%}	0	—	0.0926 ^{+19,7%} _{-19,7%}
	14.9	1.33	C ₂ H ₃ Cl	1	0.238 ^{+274%} _{-274%}	0.108 ^{+10,3%} _{-10,3%}	1	0.78 ^{+40%} _{-29,4%}	0.0743 ^{+5,92%} _{-5,92%}
	25.8	1.63	C ₂ H ₃ Cl	5	3.82 ^{+13,5%} _{-14,6%}	0.262 ^{+6,52%} _{-6,52%}	0	—	0.609 ^{+8,23%} _{-8,23%}
	16.9	1.22	C ₂ H ₃ Cl	0	—	0.391 ^{+5,76%} _{-5,76%}	0	—	0.0575 ^{+24,6%} _{-24,6%}
	gesamt				5.29 ^{+16%} _{-16,4%}			1.61 ^{+19,6%} _{-14,6%}	
konventionell				6.05				0.468	
65	19.5	1.47	C ₂ H ₃ Cl	1	0.5 ^{+4,56%} _{-4,18%}	—	1	8.36 ^{+12,6%} _{-11,8%}	0.176 ^{+8,2%} _{-8,2%}
	17.7	0.867	C ₂ H ₃ Cl	3	0.446 ^{+30,2%} _{-18,4%}	0.0212 ^{+10,2%} _{-10,2%}	2	5.09 ^{+7,6%} _{-6,61%}	0.689 ^{+28,6%} _{-28,6%}
	14.9	1.53	C ₂ H ₃ Cl	2	0.276 ^{+59,6%} _{-61,7%}	0.193 ^{+19,2%} _{-19,2%}	0	—	0.146 ^{+14,2%} _{-14,2%}
	13.7	1.26	C ₂ H ₃ Cl	1	0.114 ^{+27,2%} _{-34,8%}	0.0183 ^{+3,69%} _{-3,69%}	0	—	0.0487 ^{+23,6%} _{-23,6%}
	16.5	1.45	C ₂ H ₃ Cl	2	0.242 ^{+33,3%} _{-29,8%}	—	0	—	0.0909 ^{+14,6%} _{-14,6%}
	gesamt				1.81 ^{+12,9%} _{-11,6%}			14.6 ^{+7,81%} _{-7,26%}	
konventionell				3.35				26.4	

Fortsetzung Tabelle B.1

ID	h [cm]	Dichte [g cm ⁻³]	Mat.	⁶⁰ Co			¹³⁷ Cs		
				<i>n</i>	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]	<i>n</i>	\mathcal{A}_{pkt} [MBq]	\mathcal{A}_{hom} [MBq]
66	35.9	1.35	C ₂ H ₃ Cl	1	0.0268 ^{+4,56%} _{-4,18%}	0.375 ^{+3,8%} _{-3,8%}			
	41	1.27	C ₂ H ₃ Cl	8	1.17 ^{+19,9%} _{-18,1%}	—			
			gesamt		1.57 ^{+14,8%} _{-13,5%}				
			konventionell		1.95				
67	12.4	1.17	Al	0	—	0.00477 ^{+61,8%} _{-61,8%}			
	14.3	1.25	Al	0	—	0.05 ^{+18,8%} _{-18,8%}			
	14.3	1.28	Al	0	—	0.131 ^{+11,7%} _{-11,7%}			
	13	1.36	Al	1	0.292 ^{+25,8%} _{-22,3%}	0.11 ^{+4,94%} _{-4,94%}			
	12.4	1.87	Al	0	—	0.0534 ^{+19,9%} _{-19,9%}			
	14.1	1.24	Al	0	—	0.00296 ^{+74,1%} _{-74,1%}			
			gesamt		0.644 ^{+12,2%} _{-10,7%}				
			konventionell		0.702				
68	27.8	2.86	Fe	4	6.24 ^{+29%} _{-21,2%}	0.333 ^{+4,55%} _{-4,55%}			
	19.3	2.85	Fe	1	1.88 ^{+64,2%} _{-43,1%}	0.127 ^{+3,51%} _{-3,51%}			
	24.6	2.93	Fe	3	1.21 ^{+3,19%} _{-2,92%}	0.334 ^{+5,21%} _{-5,21%}			
			gesamt		10.1 ^{+21,5%} _{-15,3%}				
			konventionell		4.46				
69	27.4	1.71	CaO + SiO ₂	0	—	0.00769 ^{+46,3%} _{-46,3%}	0	—	0.00854 ^{+64,5%} _{-64,5%}
	31.1	1.53	CaO + SiO ₂	0	—	0.214 ^{+7,99%} _{-7,99%}	0	—	0.0724 ^{+25,6%} _{-25,6%}
	17.1	0.788	CHO	0	—	0.327 ^{+5,4%} _{-5,4%}	0	—	0.0332 ^{+33,6%} _{-33,6%}
			gesamt		0.548 ^{+4,53%} _{-4,53%}			0.114 ^{+19,6%} _{-19,6%}	
			konventionell		0.740			0.3	
70	17.1	1.29	C ₂ H ₃ Cl	1	0.179 ^{+42,6%} _{-50,6%}	0.266 ^{+6,6%} _{-6,6%}	0	—	0.164 ^{+13%} _{-13%}
	20.5	1.4	C ₂ H ₃ Cl	4	0.917 ^{+25,6%} _{-34,2%}	—	2	0.905 ^{+35,8%} _{-25%}	0.00357 ^{+53,3%} _{-53,3%}
	17.1	1.45	C ₂ H ₃ Cl	2	4.14 ^{+286%} _{-62,6%}	—	0	—	0.0874 ^{+15,1%} _{-15,1%}
	15.3	1.42	C ₂ H ₃ Cl	1	0.12 ^{+47,9%} _{-46%}	—	0	—	0.0844 ^{+16,6%} _{-16,6%}
	10.8	1.23	C ₂ H ₃ Cl	0	—	0.0907 ^{+14,4%} _{-14,4%}	0	—	0.0293 ^{+27,4%} _{-27,4%}
			gesamt		5.71 ^{+208%} _{-45,8%}			1.27 ^{+25,6%} _{-17,9%}	
			konventionell		2.73			0.485	
71	16.5	0.951	C ₅ H ₈ S ₂	2	0.363 ^{+30,3%} _{-26,1%}	0.313 ^{+8,61%} _{-8,61%}	0	—	0.0592 ^{+22,1%} _{-22,1%}
	18.7	1.43	C ₂ H ₃ Cl	1	0.408 ^{+23,7%} _{-21%}	0.246 ^{+4,41%} _{-4,41%}	0	—	0.042 ^{+36,7%} _{-36,7%}
	15.3	1.23	C ₂ H ₃ Cl	0	—	0.368 ^{+6,09%} _{-6,09%}	0	—	0.045 ^{+33%} _{-33%}
	25.6	1.71	C ₂ H ₃ Cl	1	3.33 ^{+8,24%} _{-7,81%}	0.666 ^{+6,54%} _{-6,54%}	1	0.867 ^{+25%} _{-22%}	0.102 ^{+5,47%} _{-5,47%}
			gesamt		5.7 ^{+5,55%} _{-5,19%}			1.12 ^{+19,6%} _{-17,3%}	
			konventionell		5.08			0.410	

Fortsetzung Tabelle B.1

⁶⁰ Co							¹³⁷ Cs		
ID	h [cm]	Dichte [g cm ⁻³]	Mat.	<i>n</i>	<i>A_{pkt}</i> [MBq]	<i>A_{hom}</i> [MBq]	<i>n</i>	<i>A_{pkt}</i> [MBq]	<i>A_{hom}</i> [MBq]
72	15.1	1.21	C ₅ H ₈ S ₂	0	—	0.0183 ^{+25,9% -25,9%}	0	—	0.00983 ^{+46,3% -46,3%}
	19.9	1.17	C ₅ H ₈ S ₂	1	0.128 ^{+62,2% -97,9%}	0.0129 ^{+3,53% -3,53%}	0	—	0.0567 ^{+21,6% -21,6%}
	23.6	1.25	C ₅ H ₈ S ₂	4	0.32 ^{+84,4% -37,2%}	0.281 ^{+3,38% -3,38%}	0	—	0.105 ^{+18,9% -18,9%}
	13.6	1.18	C ₂ H ₃ Cl	0	—	0.261 ^{+7,37% -7,37%}	0	—	0.0705 ^{+18,3% -18,3%}
	10.8	0.76	CHO	0	—	0.124 ^{+9,21% -9,21%}	0	—	0.0322 ^{+22,4% -22,4%}
	gesamt				1.15 ^{+24,6% -15,3%}		0.274 ^{+10,2% -10,2%}		
konventionell				2.05		0.109			
73	18.7	1.72	C ₂ H ₃ Cl	3	1.58 ^{+17,3% -21,9%}	0.306 ^{+5,48% -5,48%}	0	—	0.253 ^{+14,1% -14,1%}
	17.9	1.69	C ₂ H ₃ Cl	1	0.141 ^{+4,56% -4,18%}	—	0	—	0.14 ^{+16,9% -16,9%}
	20.7	1.35	C ₂ H ₃ Cl	3	1.81 ^{+17,6% -17,2%}	—	0	—	0.208 ^{+16% -16%}
	20.7	1.43	C ₂ H ₃ Cl	2	1.15 ^{+19,6% -17,3%}	0.232 ^{+15,5% -15,5%}	0	—	0.112 ^{+22,6% -22,6%}
	gesamt				5.22 ^{+9,16% -9,72%}		0.714 ^{+8,4% -8,4%}		
konventionell				7.29		0.460			
74	23.2	0.809	CHO + Al	0	—	0.387 ^{+4,55% -4,55%}	0	—	0.0782 ^{+14,3% -14,3%}
	22.6	0.822	CHO + Al	0	—	0.0637 ^{+11% -11%}	0	—	0.0514 ^{+14,3% -14,3%}
	20.1	0.974	CHO + Al	0	—	0.405 ^{+5,01% -5,01%}	0	—	0.106 ^{+14,5% -14,5%}
	17.3	0.874	CHO + Al	2	0.761 ^{+11,8% -11,6%}	0.00441 ^{+3,42% -3,42%}	0	—	0.0899 ^{+22,8% -22,8%}
	gesamt				1.62 ^{+5,78% -5,7%}		0.325 ^{+8,89% -8,89%}		
konventionell				1.96		0.167			
75	20.7	0.804	CHO + Al	2	0.693 ^{+12,4% -11,9%}	0.154 ^{+5,54% -5,54%}			
	18.9	0.817	CHO + Al	0	—	0.00969 ^{+27,3% -27,3%}			
	18.5	0.883	CHO + Al	0	—	0.0029 ^{+55% -55%}			
	21.4	0.844	CHO + Al	0	—	0.0101 ^{+26% -26%}			
	gesamt				0.87 ^{+9,97% -9,57%}				
konventionell				1.19					
76	24.4	1.1	CHO + Al	2	0.197 ^{+23,8% -21,3%}	0.0372 ^{+3,46% -3,46%}			
	20.3	1.09	CHO + Al	0	—	0.0685 ^{+12,4% -12,4%}			
	21	1.11	CHO + Al	1	0.0838 ^{+37,8% -27,9%}	0.0141 ^{+3,45% -3,45%}			
	13.7	0.806	C ₂ H ₃ Cl	1	0.143 ^{+21,5% -19,7%}	0.0214 ^{+5,68% -5,68%}			
	gesamt				0.565 ^{+11,5% -9,97%}				
konventionell				9.23					

Abbildungsverzeichnis

1.1	Klassifizierung radioaktiver Abfälle.	3
1.2	Verursacher von konditionierten vernachlässigbar wärmeentwickelnden Abfällen.	5
2.1	Zerfallsmodi der 190 Radionuklide, die für die Endlagerung von radioaktiven Abfällen in Konrad deklarationspflichtig sind.	15
3.1	Reichweite von α -Teilchen und Elektronen in Aluminium als Funktion der Energie.	23
3.2	Feynman-Diagramm für den Photoeffekt.	24
3.3	Produktion von Röntgenstrahlung oder Auger-Elektronen beim Photoeffekt.	25
3.4	Feynman-Diagramm für die Compton-Streuung.	26
3.5	Schematische Zeichnung des Kinematik bei der Compton-Streuung.	26
3.6	Feynman-Diagramm für die Paarbildung im Kernpotential.	27
3.7	Dominanzbereiche der Photonenreaktionen als Funktion der Kernladungszahl Z und der Energie.	28
3.8	Wechselwirkungsquerschnitte und Massenschwächungskoeffizienten für die verschiedenen Photonreaktionen als Funktion der Energie in Germanium.	29
3.9	Aufbau eines koaxialen HPGe-Detektorsystems.	31
3.10	Vergleich von ^{60}Co -Spektren aufgenommen mit unterschiedlichen Detektoren.	33
4.1	Schematische Zeichnung eines integralen γ -Scan Messsystems.	39
4.2	Mögliche Formen der Kollimationsfenster für ein Detektionssystem zum Einsatz in segmentierten γ -Scan Messsystemen in einer Frontansicht.	41
4.3	Schematische Zeichnung eines Messsystems für segmentierte γ -Scan Messungen.	44
4.4	Zählratenverteilungen für die Schlüsselnuklide ^{60}Co und ^{137}Cs aus einer SGS-Messung eines Abfallfasses mit verpressten Abfallprodukten.	46
6.1	Das γ -Scan Messsystem Gernod II für die Routinecharakterisierung von radioaktiven Abfallfässern am Forschungszentrum Jülich.	60
6.2	Technische Zeichnung des Detektoraufbaus.	60
6.3	Effizienz und relative Energieauflösung des im γ -Scan System Gernod II benutzten HPGe-Detektionssystems.	63
6.4	Geant4-Visualisierung des Detektionssystems mit und ohne Kollimator.	64
6.5	Vergleich der experimentellen und simulierten Effizienzen.	65
6.6	Aufsicht des Setups für die Simulation von SGS-Messungen.	66
6.7	Charakterisierung des Radionuklid- und Matrixinventars von 76 konditionierten Abfallfässern.	67
7.1	Ablaufdiagramm für das SGSreco-Framework.	71
7.2	Schematische Zeichnung der Komponenten des Detektionssystems.	71
7.3	Geometrischer Aufbau der Komponenten eines Abfallfasses.	72
7.4	Schematische Darstellung zur Entstehung von Spiegelpeaks durch die Rotation des Abfallfasses.	73
7.5	Schematische Zeichnung der geometrischen Parameter für die Berechnung des effektiven Raumwinkels.	75
7.6	Schematische Darstellung der Verteilung von Gitterpunkten auf der Detektorfrontfläche für die numerischen Berechnung des effektiven Raumwinkels.	76

7.7	Schamtische Zeichnung zur Bestimmung der Weglängen des Photons auf seiner Trajektorie durch die einzelnen Matrixabschnitte und den Kollimator.	76
7.8	Charakteristische Trajektorien für die Bestimmung der Weglänge der Photonen im Kollimator.	78
7.9	Schematische Darstellung der charakteristischen Trajektorien durch den Detektorkristall und durch das Kühlloch.	78
7.10	Schematische Darstellung des Schattenmodells zur Berechnung des geometrischen Raumwinkels, den der Detektor einer Punktquelle entgegensetzt.	79
7.11	Schematische Zeichnung der Überlappungsflächen des durch die Kollimation geformten Strahlungskegels und des Detektors im Rahmen des Schattenmodells.	81
7.12	Ablaufdiagramm für die Berechnung von Zählratenverteilungen in SGSreco	83
7.13	Vergleich zwischen simulierten mit den aus SGSreco numerisch und analytisch berechneten Effizienzfeldern für eine ^{152}Eu -Punktquelle ohne Berücksichtigung eines Abfallfasses. ($E_\gamma \geq 964 \text{ keV}$)	85
7.14	Vergleich zwischen simulierten mit den aus SGSreco numerisch und analytisch berechneten Effizienzfeldern für eine ^{152}Eu -Punktquelle ohne Berücksichtigung eines Abfallfasses. ($E_\gamma \leq 779 \text{ keV}$)	86
7.15	Vergleich zwischen simulierten mit den aus SGSreco numerisch und analytisch berechneten Effizienzfeldern für eine ^{152}Eu -Punktquelle unter Berücksichtigung der Absorption in allen Matrixabschnitten. ($E_\gamma \geq 964 \text{ keV}$)	87
7.16	Vergleich zwischen simulierten mit den aus SGSreco numerisch und analytisch berechneten Effizienzfeldern für eine ^{152}Eu -Punktquelle unter Berücksichtigung der Absorption in allen Matrixabschnitten. ($E_\gamma = 779 \text{ keV}$)	88
7.17	Pullverteilungen bei verschiedenen Gittergrößen und Energien für den Vergleich von simulierten Daten und den numerischen Berechnungen aus SGSreco.	89
7.18	Schematische Zeichnung der Diskretisierung einer homogenen Radionuklidverteilung durch dicht beieinander verteilte Punktquellen.	90
7.19	Ablaufdiagramm für die Rekonstruktion der Radionuklidverteilung und ihrer Gesamtaktivität in einem Abfallfass durch SGSreco.	93
7.20	Rekonstruktionsstufen in SGSreco mit den jeweilig möglichen Rekonstruktionsparametern einer Stufe.	94
7.21	Ablaufdiagramm für die Bestimmung von Maximal nicht-detektierbaren Aktivitäten in einem Abfallfass durch SGSreco.	97
8.1	Verteilung von $\tilde{\epsilon}_i$ für Photonen mit einer γ -Energie von $1,332 \text{ MeV}$ (^{60}Co) in einer Abfallmatrix aus LD-PE.	103
8.2	Beitrag der anteiligen Effizienzen einzelner Segmente zu ϵ_{hom} als Funktion des Segmentabstands zum Referenzsegment.	104
8.3	Abweichung der rekonstruierten Aktivität von der Referenzaktivität für eine homogene Radionuklidverteilung in verschiedenen Matrixmaterialien als Funktion der Gittergröße.	106
8.4	Rechenzeit für die Rekonstruktion von radionuklidspezifischen Aktivitäten einer homogenen Radionuklidverteilung als Funktion der Gittergröße in SGSreco.	107
9.1	Anteil nicht annehmbarer Startparameter für die $\log(\mathcal{L})$ -Anpassung als Funktion der Anzahl an χ^2 -Iterationen.	114
9.2	Zählratenverteilungen einer ^{60}Co -Punktquelle bei der Referenzposition $r_Q = 10 \text{ cm}$, $\phi_Q = 0^\circ$ und $z_Q = 2 \text{ cm}$ in einer Matrix aus LD-PE.	115
9.3	Simulierte und rekonstruierte Zählratenverteilung für eine ^{60}Co -Punktquelle in einer Matrix aus LD-PE bei $r_Q = 10 \text{ cm}$, $\phi_Q = 0^\circ$ und $z_Q = 2 \text{ cm}$. Es wurde der Standardscanmodus benutzt.	116
9.4	Simulierte und rekonstruierte Zählratenverteilung für eine ^{60}Co -Punktquelle in einer Matrix aus LD-PE bei $r_Q = 10 \text{ cm}$, $\phi_Q = 0^\circ$ und $z_Q = 2 \text{ cm}$. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt.	117
9.5	Häufigkeitsverteilung der Abweichungen zwischen den rekonstruierten Aktivitäten und den Referenzaktivitäten im Vergleich von SGSreco und der konventionellen Methode.	118

9.6	Häufigkeitsverteilung der absoluten Abweichungen zwischen den rekonstruierten Positionen und den Referenzpositionen.	120
9.7	Schematische Darstellung für SGS-Messung von Punktquellen an verschiedenen radialen Positionen in einem Abfallfass mit dem Standardscanmodus bei diskreten Fassrotationen.	120
9.8	Aktivitätsabweichungen aus der Rekonstruktion von ^{60}Co -Punktquellen als Funktion der Referenzposition für alle Matrixmaterialien auf der Basis des Standardscanmodus mit diskreten Fassrotationen.	121
9.9	Aktivitätsabweichungen aus der Rekonstruktion von ^{60}Co -Punktquellen als Funktion der Referenzposition für alle Matrixmaterialien auf der Basis des Alternativscanmodus mit diskreten Fassrotationen.	122
9.10	Aktivitätsabweichungsverteilungen aus der Rekonstruktion von ^{60}Co -Punktquellen in verschiedenen Matrixmaterialien auf der Basis des Alternativscanmodus.	123
9.11	Simulierte und mit dem numerischen Modell rekonstruierte Zählratenverteilung für eine ^{60}Co -Punktquelle in einer Matrix aus LD-PE bei $r_Q = 10\text{ cm}$, $\phi_Q = 0^\circ$ und $z_Q = 2\text{ cm}$. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt.	124
9.12	Aktivitätsabweichungsverteilungen bei der Rekonstruktion von ^{60}Co -Punktquellen in allen verschiedenen Matrixmaterialien. mit dem numerischen und dem analytischen Modell.	125
9.13	Pullverteilungen für die Aktivitätsabweichungen bei der Rekonstruktion von ^{60}Co -Punktquellen in allen Matrixmaterialien mit dem numerischen und dem analytischen Modell. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt.	126
9.14	Häufigkeitsverteilung der Rechenzeit mit und ohne Fehlerberechnung zur Rekonstruktion einer ^{60}Co -Punktquelle mit dem numerischen Modell. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt.	126
9.15	Verteilung der Dichte- und Aktivitätsabweichungen bei der Rekonstruktion von Abfällen mit unbekannten Matrixdichten in Abhängigkeit der einzelnen Matrixmaterialien. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt.	127
9.16	Zählratenverteilungen von fünf ^{60}Co -Punktquellen in einer Matrix aus LD-PE. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt.	128
9.17	Simulierte und mit dem numerischen Modell rekonstruierte Zählratenverteilung für fünf ^{60}Co -Punktquellen in einer Matrix aus LD-PE. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt.	129
9.18	Aktivitätsabweichungen von Ensembles aus ^{60}Co -Punktquellen in einer LD-PE Matrix und die benötigten Rechenzeiten inklusive der Fehleranalyse. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt	130
9.19	Anteil der rekonstruierten Aktivität einer homogenen ^{60}Co -Verteilung an der rekonstruierten Gesamtaktivität für Ensembles aus zwei bis fünf ^{60}Co -Punktquellen in einer Matrix aus LD-PE. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt.	131
9.20	Abweichungsverteilungen der rekonstruierten Aktivitäten von den Referenzaktivitäten im Vergleich zwischen SGSreco und der konventionellen Methode bei der Rekonstruktion von Ensembles aus zwei bis fünf ^{60}Co -Punktquellen in einer Matrix aus LD-PE. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt.	131
9.21	Häufigkeitsverteilung der $\log(\mathcal{L}_{\min})$ -Werte (llh) für die analysierten Ensembles mehrerer ^{60}Co -Punktquellen in einer Matrix aus LD-PE. Es wurden vier Segmente berücksichtigt und der Alternativscanmodus benutzt.	133
9.22	Simulierte und rekonstruierte Zählratenverteilung für eine sphärisch ausgedehnte ^{60}Co -Quelle in einer Matrix aus LD-PE bei $r_Q = 10\text{ cm}$, $\phi_Q = 0^\circ$ und $z_Q = 2\text{ cm}$ mit einem Radius von 2 cm. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt.	134
9.23	Simulierte und rekonstruierte Zählratenverteilung für eine sphärisch ausgedehnte ^{60}Co -Quelle in einer Matrix aus LD-PE bei $r_Q = 10\text{ cm}$, $\phi_Q = 0^\circ$ und $z_Q = 2\text{ cm}$ mit einem Radius von 5 cm. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt.	135
9.24	Abweichungen der rekonstruierten Aktivitäten von den Referenzaktivitäten für sphärisch ausgedehnte ^{60}Co -Quellen mit verschiedenen Radien in den unterschiedlichen Matrixmaterialien. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt.	136
9.25	Maximal nicht-detektierbaren Aktivitäten für eine ^{60}Co -Punktquelle und ein homogenes ^{60}Co -Inventar als Funktion der Matrixdichte bei einer Höhe des Fassabschnitts von 16 cm.	137

10.1	Testfassabschnitt für die experimentelle Validierung von SGSreco.	140
10.2	Technische Zeichnungen und Fotos der Referenzprüfstrahler für die experimentelle Validierung von SGSreco mit einem Testfassabschnitt.	141
10.3	Aktivitätsabweichungen und Pulls aus der Rekonstruktion von Quellen als Funktion der Referenzposition (r_Q und ϕ_Q) im Testfassabschnitt. Es wurde der Standardscanmodus mit einer kontinuierlichen Fassrotation benutzt.	142
10.4	Positionsabweichungen aus der Rekonstruktion der Quellen als Funktion der Referenzposition (r_Q und ϕ_Q) im Testfassabschnitt. Es wurde der Standardscanmodus mit einer kontinuierlichen Fassrotation benutzt.	143
10.5	Aktivitätsabweichungen und Pulls aus der Rekonstruktion der ^{60}Co -Quelle AA667 als Funktion der Referenzposition (r_Q und ϕ_Q) im Testfassabschnitt. Es wurde der Alternativscanmodus mit einer kontinuierlichen Fassrotation benutzt.	144
10.6	Gemessene und rekonstruierte Zählratenverteilungen der zwei ^{60}Co -Quellen AA667 und AA664 im Testfassabschnitt. Es wurde der Standardscanmodus mit einer kontinuierlichen Fassrotation benutzt.	145
10.7	Aktivitätsabweichungsverteilung für die gleichzeitigen Rekonstruktion der ^{60}Co -Quellen AA667 und AA664 im Testfassabschnitt für jede Quelle einzeln und für die Gesamtaktivität. Es wurde der Standardscanmodus mit einer kontinuierlichen Fassrotation benutzt.	147
10.8	Testfassabschnitt mit einem Abschirmbehälter für Quellen.	147
10.9	Gemessene und rekonstruierte Zählratenverteilungen der ^{152}Eu -Quelle WW653 in einem Abschirmbehälter mit einer Wandstärke von 3,5 mm aus Blei im Loch 1 des Testfassabschnitts. Zur Messung wurde der Standardscanmodus mit einer kontinuierlichen Fassrotation benutzt.	148
10.10	Gemessene und rekonstruierte Zählratenverteilungen der ^{152}Eu -Quelle WW653 in einem Abschirmbehälter mit einer Wandstärke von 3,5 mm aus Blei im Loch 2 des Testfassabschnitts. Zur Messung wurde der Standardscanmodus mit einer kontinuierlichen Fassrotation benutzt.	149
10.11	Abweichungen von der mit SGSreco und der konventionellen Methode rekonstruierten Aktivitäten der Schlüsselnuklide ^{60}Co und ^{137}Cs für die 76 reanalysierten Abfallfässer.	151
11.1	Schematische Zeichnung eines Systems für transmissionskorrigierte segmentierte γ -Scan Messungen.	156

Tabellenverzeichnis

1.1	Weltweit im Betrieb befindliche Endlager für schwach- und mittelaktive beziehungsweise vernachlässigbar wärmeentwickelnde Abfälle.	4
2.1	Herstellung von Abfallprodukten aus Rohabfällen und den zugehörigen Vorbehandlungen, Zwischenprodukten und Behandlungen.	12
2.2	Maximal endlagerbare Aktivitäten relevanter Radionuklide und Radionuklidgruppen am Ende der Betriebsphase des Endlagers Konrad.	14
3.1	Analyseverfahren und deren Messzeiten für die zerstörende Charakterisierung von Abfallfässern.	21
3.2	Zusammenfassung der Kenndaten von einem HPGe-Detektor (20 % relative Effizienz) und einem $3\text{ in} \times 3\text{ in}$ LaBr ₃ - sowie NaI-Detektor.	32
3.3	Charakteristische γ -Energien und die zugehörigen Emissionswahrscheinlichkeiten für Schlüsselnuklide aus dem Betrieb, der Stilllegung und dem Rückbau von Kernkraftwerken.	35
4.1	Zusammenfassung der am häufigsten angewandten segmentierten γ -Scan Messmodi.	43
5.1	Zusammenfassung der Prozessklassen und -modelle für die Simulation der Wechselwirkung von Photonen und Elektronen mit Materie.	55
6.1	Scanmodi für SGS-Messungen.	62
6.2	Zusammenfassung der physikalischen Kenndaten der punktförmigen Prüfstrahler für die Effizienzkalibration.	62
7.1	Charakteristische γ -Energien und Emissionswahrscheinlichkeiten der in der Geant4-Applikation implementierten ¹⁵² Eu Punktquelle.	84
7.2	Parameter der Pullverteilungen aus den Abweichungen zwischen den numerisch berechneten und simulierten Effizienzfeldern.	88
7.3	Zusammenstellung der unterschiedlichen vorab definiert Rekonstruktionsmodi in SGSreco.	95
8.1	Ergebnisse der Aktivitätsrekonstruktion von homogenen Radionuklidinventaren mit der konventionellen Methode und mit SGSreco auf der Basis von Simulationen.	108
8.2	Ergebnisse der Aktivitätsrekonstruktion von homogenen Radionuklidinventaren in einem betonierten Referenzfass mit der konventionellen Methode und mit SGSreco.	109
9.1	In der Simulationsstudie berücksichtigte Matrixmaterialien und ihre Dichten.	113
9.2	Ergebnisse der rekonstruierten Parameter einer ⁶⁰ Co-Punktquelle in einer Matrix aus LD-PE bei $r_Q = 10\text{ cm}$, $\phi_Q = 0^\circ$ und $z_Q = 2\text{ cm}$.	118
9.3	Median, Mittelwert und Standardabweichung der Aktivitätsabweichungsverteilungen.	119
9.4	Median der Positionsabweichungsverteilungen.	119
9.5	Ergebnisse der im numerischen Modell rekonstruierten Parameter einer ⁶⁰ Co-Punktquelle bei $r_Q = 10\text{ cm}$, $\phi_Q = 0^\circ$ und $z_Q = 2\text{ cm}$ in einer Matrix aus LD-PE.	125

9.6	Werte der rekonstruierten Parameter von fünf ^{60}Co -Punktquellen in einer Matrix aus LD-PE. Es wurde der Alternativscanmodus benutzt.	130
10.1	Bezeichnungen und Aktivitäten der benutzten Referenzquellen am Datum der Messungen.	141
10.2	Werte der rekonstruierten Parameter der zwei ^{60}Co -Quellen AA667 und AA664 im Testfassabschnitt.	146
10.3	Werte der rekonstruierten Parameter der ^{152}Eu -Quelle WW653 in einem Abschirmbehälter in den Löchern 1 und 2 im Testfassabschnitt.	150
10.4	Zusammenfassung der deklarierten stofflichen Zusammensetzung der Abfallmatrix in den Presslingen der 76 reanalysierten Abfallfässern und die jeweilig angenommen Summenformeln.	150
12.1	Richtwerte für die Genauigkeit, Unsicherheiten und Rechenzeiten der konventionellen Methode und von SGSreco für die Aktivitätsrekonstruktion bei unterschiedlichen Szenarien.	159
A.1	Zusammenfassung der physikalischen Daten der 190 deklarationspflichtigen Radionuklide für endzulagernde radioaktive Abfälle im Endlager Konrad.	162
B.1	Zusammenfassung der Ergebnisse aus der Reanalyse realer Abfallgebinde mit SGSreco.	168

Literatur

- Agostinelli, S. u. a. "Geant4 - A simulation toolkit". In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 506.3 (Juli 2003), S. 250–303 (siehe S. 53).
- Allison, J., K. Amako und J. Apostolakis. "Geant4 developments and applications". In: *Nuclear Science* 53.1 (2006), S. 270–278 (siehe S. 53).
- Arbeitskreis Auswahlverfahren Endlagerstandorte. *Auswahlverfahren für Endlagerstandorte*. Techn. Ber. Köln, 2002 (siehe S. 7).
- Bai, Y. F. u. a. "An improved method for the non-destructive characterization of radioactive waste by gamma scanning." In: *Applied Radiation and Isotopes* 67.10 (Okt. 2009), S. 1897–903 (siehe S. 48).
- Berger, M.J. u. a. *NIST XCOM: Photon Cross Sections Database v1.5*. Techn. Ber. US Department of Commerce, NIST, 2010. URL: <http://www.nist.gov/pml/data/xcom/index.cfm> (siehe S. 29, 55, 62, 74).
- Bethe, H.A. "Zur Theorie des Durchganges schneller Korpuskularstrahlung durch Materie". In: *Annals of Physics* 5.325 (1930) (siehe S. 23).
- Bethe, H.A. und W. Heitler. "On the Stopping of Fast Particles and on the Creation of Positive Electrons". In: *Proceedings of the Royal Society of London. Series A* 146.856 (Aug. 1934), S. 83–112 (siehe S. 27).
- Biggs, F. und R. Lighthill. *Analytical Approximations for X-Ray Cross Sections III*. Techn. Ber. Albuquerque: Sandia National Laboratories, Aug. 1988 (siehe S. 55).
- Brennecke, P. *Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle (Endlagerungsbedingungen, Stand: Oktober 2010) - Endlager Konrad*. Techn. Ber. Salzgitter: Bundesamt für Strahlenschutz, 2011 (siehe S. 12–15).
- Bruggeman, M. und R. Carchon. "Solidang, a computer code for the computation of the effective solid angle and correction factors for gamma spectroscopy-based waste assay". In: *Applied Radiation and Isotopes* 52.3 (März 2000), S. 771–776 (siehe S. 48, 75).
- Brun, R. und F. Rademakers. "ROOT - An object oriented data analysis framework". In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A* 389.1-2 (Apr. 1997), S. 81–86 (siehe S. 57, 93).
- Bücherl, T., E. Kaciniel und C. Lierse. *Synopsis of Gamma Scanning Systems, Comparison of Determining Systems and Measuring Procedures for Radioactive Waste Packages*. Techn. Ber. München: European Network of Testing Facilities for the Quality Checking of Radioactive Waste Packages, 1998 (siehe S. 38).
- Bücherl, T. u. a. *Improvement of Passive and Active Neutron Assay Techniques for the Characterisation of Radioactive Waste Packages*. Techn. Ber. Luxembourg: Europäische Kommission, 1999 (siehe S. 21).
- Bundesamt für Strahlenschutz. *Endlager > Abfälle*. 2013. URL: www.bfs.de/de/endlager/abfaelle (siehe S. 5, 6).
- Bundesamt für Strahlenschutz. *Endlager-Konrad*. 2013. URL: www.endlager-konrad.de (siehe S. 12).
- Bundesamt für Strahlenschutz. *Konzeptionelle und Sicherheitstechnische Fragen der Endlagerung Radioaktiver Abfälle - Wirtsgesteine im Vergleich*. Techn. Ber. Salzgitter, 2005 (siehe S. 7).
- Bundesministerium des Inneren. *Sicherheitskriterien für die Endlagerung radioaktiver Abfälle in einem Bergwerk*. Techn. Ber. Bonn, 1984 (siehe S. 2, 8).

- Bundesministerium für Umwelt Naturschutz und Reaktorsicherheit. *Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle*. Techn. Ber. Berlin, 2010 (siehe S. 2).
- Caspary, G., K. Kroth und H.-J. Sanden. "Method for determining the activity of large objects using gamma spectrometer". Patent EP1167998 A2 (DE). 2. Jan. 2002 (siehe S. 47).
- Caspary, G. und H.-J. Sanden. "Optimisation of Gamma Assay Techniques for the Quality Checking of Radioactive Waste Packages". In: *Non-Destructive Analyses for the Quality Checkings of Radioactive Waste Packages*. Hrsg. von L.P.M. van Velzen. Arnheim: EN-TRAP, 2002 (siehe S. 21, 42, 155).
- Cipolla, S. J. "Calculating the solid angle for different source shapes and orientations as viewed by a detector with a cylindrical collimator". In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A* 579.1 (Aug. 2007), S. 268–271 (siehe S. 80).
- Cirrone, G.a.P. u. a. "Validation of the Geant4 electromagnetic photon cross-sections for elements and compounds". In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A* 618.1-3 (Juni 2010), S. 315–322 (siehe S. 56).
- Cullen, D.E., J.H. Hubbell und L. Kissel. *EPDL97: the evaluated photo data library '97 version*. Techn. Ber. Livermore: Lawrence Livermore National Laboratory, Sep. 1997 (siehe S. 55).
- DIN 32645:2008-11. *Chemische Analytik - Nachweis-, Erfassungs- und Bestimmungsgrenze unter Wiederholbedingungen - Begriffe, Verfahren, Auswertung* (siehe S. 96).
- Dorado, A., F. V. Frazzoli und R. Emetti. "Segmented Gamma Scanning of Conditioned Radioactive Wastes: Developement, Experimental Validation, and Application of an Angular Scanning Procedure for Hot-Spot Characterization". In: *Nuclear Technology* 144 (2003) (siehe S. 48).
- Dung, T.Q. "Calculation of the systematic error and correction factors in gamma waste assay system". In: *Annals of Nuclear Energy* 24.1 (Jan. 1997), S. 33–47 (siehe S. 46).
- Dung, T.Q. u. a. "Evaluation of a gamma technique for the assay of radioactive waste drums using two measurements from opposing directions." In: *Applied Radiation and Isotopes* 67.1 (Jan. 2009), S. 164–9 (siehe S. 48).
- Eifler, P. "Entwicklung und Bau einer Tomographieanlage für Routinemessungen an radioaktiven Abfallfässern zur Qualitätskontrolle". Diss. RWTH Aachen, 1995 (siehe S. 20).
- Ekström, L.P. und R.B. Firestone. *WWW Table of Radioactive Isotopes, database*. 1999 (siehe S. 62, 161).
- Elhardt, A. "Aktivitätsbestimmung von Gamma-Emittenten in großvolumigen Objekten". Diss. Technische Universität München, 2006 (siehe S. 48).
- Ewa, I. O. u. a. "Monte Carlo determination of full energy peak efficiency for a HPGe detector." In: *Applied Radiation and Isotopes* 55.1 (Juli 2001), S. 103–8 (siehe S. 64).
- Filß, P. "Relation between the activity of a high-density waste drum and its gamma count rate measured with an unshielded Ge-detector". In: *Applied Radiation and Isotopes* 46.8 (Aug. 1995), S. 805–812 (siehe S. 39, 40).
- Filß, P. "Specific activity of large-volume sources determined by a collimated external gamma detector". In: *Kerntechnik* 54 (1989), S. 198–201 (siehe S. 43, 46, 108).
- Gallagher, W. J. und S. J. Cipolla. "A method for accurately determining the thickness dimensions and photon-intensity corrections of a thick, covered, photon source". In: *Nuclear Instruments and Methods* 125.2 (Apr. 1975), S. 269–276 (siehe S. 80).
- Geant Collaboration. *Physics Reference Manual*. Techn. Ber. Genf, 2012 (siehe S. 55).
- Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit mbH. *Vorläufige Sicherheitsanalyse Gorleben*. 2013. URL: <http://www.grs.de/vorlaeufige-sicherheitsanalyse-gorleben-vsg> (siehe S. 7).

- Gesellschaft für Nuklear-Service mbH. *Webpage*. 2013. URL: www.gns.de (siehe S. 12).
- Gesellschaft für Strahlen und Umweltforschung mbH. *Eignungsprüfung der Schachanlage Konrad für die Endlagerung radioaktiver Abfälle*. Techn. Ber. Braunschweig: Institut für Tiefenlagerung, 1982 (siehe S. 8).
- Göbbels, C. "Studie zur Anwendung des LaBr₃-Detektors für die Charakterisierung radioaktiver Abfälle mittels Gamm-Scanning". B.Eng. FH Aachen, 2012 (siehe S. 154).
- Hardy, J. C. u. a. "Precise efficiency calibration of an HPGe detector: source measurements and Monte Carlo calculations with sub-percent precision." In: *Applied Radiation and Isotopes* 56.1-2 (2002), S. 65–9 (siehe S. 65).
- Havenith, A., J. Kettler und E. Mauerhofer. "Zyklische Neutronen-Aktivierung zur zerstörungsfreien Charakterisierung radioaktiver Abfälle". In: *Jahrestagung Kerntechnik*. Berlin, 2012 (siehe S. 22).
- Helmer, R.G u. a. "The use of Monte Carlo calculations in the determination of a Ge detector efficiency curve". In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A* 511.3 (Okt. 2003), S. 360–381 (siehe S. 65).
- Huy, N.Q., D.Q. Binh und V.X. An. "Study on the increase of inactive germanium layer in a high-purity germanium detector after a long time operation applying MCNP code". In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A* 573.3 (Apr. 2007), S. 384–388 (siehe S. 65).
- International Atomic Energy Agency. *Geological Disposal of Radioactive Waste*. Techn. Ber. Wien, 2006 (siehe S. 2).
- International Atomic Energy Agency. *Strategy and Methodology for Radioactive Waste Characterization*. Techn. Ber. Wien: Waste Technology Section, 2007 (siehe S. 22, 35, 47).
- James, F. *The Interpretation of Errors in MINUIT*. Techn. Ber. Genf: CERN, 2004 (siehe S. 95).
- James, F. und M. Winkler. *MINUIT User's Guide*. Techn. Ber. Genf: CERN, 2004 (siehe S. 93, 95).
- Jovanović, S. u. a. "ANGLE: A PC-code for semiconductor detector efficiency calculations". In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 218.1 (Apr. 1997), S. 13–20 (siehe S. 75).
- Katz, L. und A. Penfold. "Range-Energy Relations for Electrons and the Determination of Beta-Ray End-Point Energies by Absorption". In: *Reviews of Modern Physics* 24.1 (Jan. 1952), S. 28–44 (siehe S. 23).
- Kettler, J. "Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse zur zerstörungsfreien Charakterisierung radioaktiver Abfälle". Diss. RWTH Aachen, 2010 (siehe S. 22).
- Keyser, R., T. Towney und R. Hagenauer. *Practical Solutions to Radioactive Waste Characterization*. Techn. Ber. Oak Ridge: EG&G Ortec und Lockheed Martin Energy Systems, (siehe S. 47).
- Klein, O. und T. Nishina. "Über die Streuung von Strahlung durch freie Elektronen nach der neuen relativistischen Quantendynamik von Dirac". In: *Zeitschrift für Physik* 52.11-12 (1929), S. 853–868 (siehe S. 26).
- Krings, T., C. Göbbels und E. Mauerhofer. "On the Applicability of LaBr₃ Scintillation-Detectors in the Non-Destructive Routine Characterization of Radioactive Waste Drums." In: *in preparation* (2013) (siehe S. 154).
- Krings, T. und E. Mauerhofer. "Reconstruction of the activity of point sources for the accurate characterization of nuclear waste drums by segmented gamma scanning." In: *Applied Radiation and Isotopes* 69.6 (Juni 2011), S. 880–9 (siehe S. 71, 80).
- Krings, T. und E. Mauerhofer. "Reconstruction of the isotope activity content of heterogeneous nuclear waste drums." In: *Applied Radiation and Isotopes* 70.7 (Juli 2012), S. 1100–3 (siehe S. 71).
- Krings, T. u. a. "A numerical method to improve the reconstruction of the activity content in homogeneous radioactive waste drums". In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A* 701 (Feb. 2013), S. 262–267 (siehe S. 90, 102, 107).

- Ma, J.-L. u. a. "Prompt gamma neutron activation analysis of toxic elements in radioactive waste packages." In: *Applied Radiation and Isotopes* 70.7 (Juli 2012), S. 1261–3 (siehe S. 22).
- Martin, E. R., D. F. Jones und J. L. Parker. *Gamma-ray measurements with the segmented gamma scan*. Techn. Ber. Los Alamos Scientific Laboratory, Dez. 1977 (siehe S. 42, 155).
- Mauerhofer, E. und J. Kettler. "Neutron activation analysis using standardized sample container for determining the neutron flux". Patent WO/2012/10162 (DE). 26. Jan. 2012 (siehe S. 22).
- Mauerhofer, E. und R. Odoj. *Messmethoden zur Charakterisierung radioaktiver Abfälle und zur Freimessung von Reststoffen aus der Stilllegung kerntechnischer Anlagen*. Techn. Ber. Aachen: RWTH Aachen, 2006 (siehe S. 20, 42, 155).
- Mauerhofer, E. u. a. "Quantitative comparison between PGNA measurements and MCNP calculations in view of the characterization of radioactive wastes in Germany and France". In: *AIP Conference Proceedings*. Bd. 1525. 1. AIP Publishing LLC, Apr. 2013, S. 432–435 (siehe S. 22).
- Moens, L. u. a. "Calculation of the absolute peak efficiency of gamma-ray detectors for different counting geometries". In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 187.2-3 (Aug. 1981), S. 451–472 (siehe S. 75).
- Niedersächsisches Umweltministerium. *Planfeststellungsbeschluss für die Errichtung und den Betrieb des Bergwerkes Konrad in Salzgitter als Anlage zur Endlagerung fester und verfestigter radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung*. Techn. Ber. Hannover, 2002 (siehe S. 9, 13).
- Oberer, R.B. u. a. *Small-Angle Compton Scattering to Determine the Depth of a Radioactive Source in Matter*. Techn. Ber. Babcock & Wilcox Technical Services Y-12, LLC, 2011 (siehe S. 47).
- Odoj, R. und P. Eifler. *Construction and testing of a computer tomography assembly for routine operation*. Techn. Ber. Luxembourg: Europäische Kommission, 1998 (siehe S. 20).
- Ortec. *MAESTRO MCA Emulation Software*. 2013. URL: <http://www.ortec-online.com/Solutions/applications-software.aspx> (siehe S. 61).
- Plank, W. und W. Eder. *Entsorgung radioaktiver Abfälle*. Techn. Ber. TÜV Süd, 1997 (siehe S. 12, 35).
- Qian, N. u. a. "Analytical calculation of the collimated detector response for the characterization of nuclear waste drums by segmented gamma scanning". In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 292.3 (Jan. 2012), S. 1325–1328 (siehe S. 160).
- Reaktor-Sicherheitskommission und Strahlenschutzkommission. *Zeitrahmen für die Beurteilung der Langzeitsicherheit eines Endlagers für radioaktive Abfälle*. Techn. Ber. Bonn, 1988 (siehe S. 2).
- Ródenas, J. u. a. "Analysis of the influence of germanium dead layer on detector calibration simulation for environmental radioactive samples using the Monte Carlo method". In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A* 496.2-3 (Jan. 2003), S. 390–399 (siehe S. 65).
- Rübel, A., I. Müller-Lyda und R. Storck. *Die Klassifizierung radioaktiver Abfälle hinsichtlich der Endlagerung*. Techn. Ber. Köln: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, 2004 (siehe S. 3).
- Rubinstein, R. Y. *Simulation and the Monte Carlo Method*. Hrsg. von David J. Balding u. a. Bd. 707. Wiley Series in Probability and Statistics November. John Wiley & Sons, 2008, S. 374 (siehe S. 52).
- Sanden, H.-J. u. a. *Optimisation of Gamma Assay Techniques for the Standard Quality Checking of Nuclear Waste Packages and Samples*. Techn. Ber. European Commission, 1999 (siehe S. 21, 49, 68, 155).
- Steyer, S. *Produktkontrolle radioaktiver Abfälle, radiologische Aspekte*. Techn. Ber. Salzgitter: Bundesamt für Strahlenschutz, 2010 (siehe S. 15).

- Steyer, S. *Produktkontrolle radioaktiver Abfälle, stoffliche Aspekte*. Techn. Ber. Salzgitter: Bundesamt für Strahlenschutz, 2010 (siehe S. 15).
- Steyn, J.J., D.G. Andrews und M. Dixmier. "Collimated detector response to point, line and plane sources". In: *Nuclear Instruments and Methods* 74.1 (Okt. 1969), S. 123–131 (siehe S. 80).
- Thierfeld, S. und F. Schartmann. *Stilllegung und Rückbau kerntechnischer Anlagen - Erfahrungen und Erwartungen*. Techn. Ber. Aachen: Brenk Systemplanung GmbH, 2012 (siehe S. 5).
- Upp, D. L. u. a. *An Innovative Method for Dead Time Correction in Nuclear Spectroscopy*. Techn. Ber. Oak Ridge: PerkinElmer Instruments Inc. (siehe S. 61).
- Westmeier, Wolfram. *GAMMA-W*. 2013. URL: <http://www.westmeier.com/3hpgesoftware.htm> (siehe S. 62).

Danksagung

Für die Unterstützung bei der Anfertigung meiner Doktorarbeit möchte ich verschiedenen Personen meinen Dank aussprechen.

Bei meinem Doktorvater Herrn Univ.-Prof. Dr. Dirk Bosbach möchte ich mich für die Möglichkeit diese Doktorarbeit anzufertigen und für seine Unterstützung in den verschiedensten Phasen der Arbeit bedanken. Bei Herrn Univ.-Prof. Dr. Bruno Thomauske möchte ich mich für die Übernahme der Zweitbegutachtung und für regelmäßige sowie konstruktive Diskussionen zu dieser Arbeit bedanken. Den wohl größten Dank möchte ich Herrn Dr. Eric Mauerhofer für die exzellente fachliche Betreuung und für unzählige Anregung sowie hilfreiche Diskussionen zu dieser Arbeit zukommen lassen.

Ich möchte mich weiterhin bei Christoph Genreith, Manuel Schumann, Dr. John Kettler, Andreas Havenith und Dr. Matthias Rossbach für die zahlreichen fachlichen Diskussionen und für die gegenseitige Unterstützung bei der täglichen Arbeit bedanken. Bei Norman Lieck, Micha Hölzle, Christian Göbbels und Ralf König möchte ich mich für die Unterstützung bei der Vorbereitung und Durchführung verschiedenster Experimente bedanken. Bei Stephan Schneider möchte ich mich für die Unterstützung bei der Durchführung von Simulationsrechnung auf dem IEK-6-Cluster bedanken. Zudem gilt mein Dank den Kollegen des Geschäftsbereichs Nuklear-Service und insbesondere dem Betriebspersonal des Abfalllagers für die Unterstützung bei zahlreichen Messungen in ihren Räumlichkeiten.

Zuletzt möchte ich mich auch bei Tina Frech-Horn, Jana Assenmacher und Dr. Hans-Jürgen Steinmetz für die Korrektur von Teilen des Manuskripts bedanken.

Band / Volume 196

**Aerosol processes in the Planetary Boundary Layer:
High resolution Aerosol Mass Spectrometry on a Zeppelin NT Airship**

F. Rubach (2013), iii, 141 pp

ISBN: 978-3-89336-918-8

Band / Volume 197

**Institute of Energy and Climate Research
IEK-6: Nuclear Waste Management - Report 2011 / 2012
Material Science for Nuclear Waste Management**

M. Klinkenberg, S. Neumeier, D. Bosbach (Eds.) (2013), 195 pp

ISBN: 978-3-89336-980-1

Band / Volume 198

Material migration in tokamak plasmas with a three-dimensional boundary

R. Laengner (2013), vi, 140, XVII pp

ISBN: 978-3-89336-924-9

Band / Volume 199

**Improved characterization of river-aquifer interactions through data
assimilation with the Ensemble Kalman Filter**

W. Kurtz (2013), xxv, 125 pp

ISBN: 978-3-89336-925-6

Band / Volume 200

**Innovative SANEX process for trivalent actinides separation
from PUREX raffinate**

A. Sypula (2013), 220 pp

ISBN: 978-3-89336-927-0

Band / Volume 201

**Transport and deposition of functionalized multi-walled carbon nanotubes
in porous media**

D. Kasel (2013), 103 pp

ISBN: 978-3-89336-929-4

Band / Volume 202

**Full-waveform inversion of surface ground penetrating radar data and
coupled hydrogeophysical inversion for soil hydraulic property estimation**

S. Busch (2013), 112 pp

ISBN: 978-3-89336-930-0

Band / Volume 203

**Politikszenerarien für den Klimaschutz VI –
Treibhausgas-Emissionsszenarien bis zum Jahr 2030
Advances in Systems Analysis 5**

P. Hansen, S. Gores und F. Chr. Matthes (Hrsg.)
(2013), XX, 257 pp
ISBN: 978-3-89336-932-4

Band / Volume 204

**Effect of Composition, Microstructure and Component Thickness
on the Oxidation Behaviour of Laves Phase Strengthened Interconnect
Steel for Solid Oxide Fuel Cells (SOFC)**

C. Asensio Jimenez (2014), 210 pp
ISBN: 978-3-89336-935-5

Band / Volume 205

**Airborne VOC measurements on board the Zeppelin NT during the
PEGASOS campaigns in 2012 deploying the improved Fast-GC-MSD
System**

J. Jäger (2014), VIII, 182 pp
ISBN: 978-3-89336-936-2

Band / Volume 206

**Pulvermetallurgische Funktionsbauteile aus NiTi- und NiTi-X
Legierungspulvern**

M. Bitzer (2014), III, 144 pp
ISBN: 978-3-89336-937-9

Band / Volume 207

**Zinkoxid: Einfluss von Dotierung und Legierungen auf elektro-optische
Eigenschaften, auf das Ätzverhalten und auf die Tempornachbehandlung**

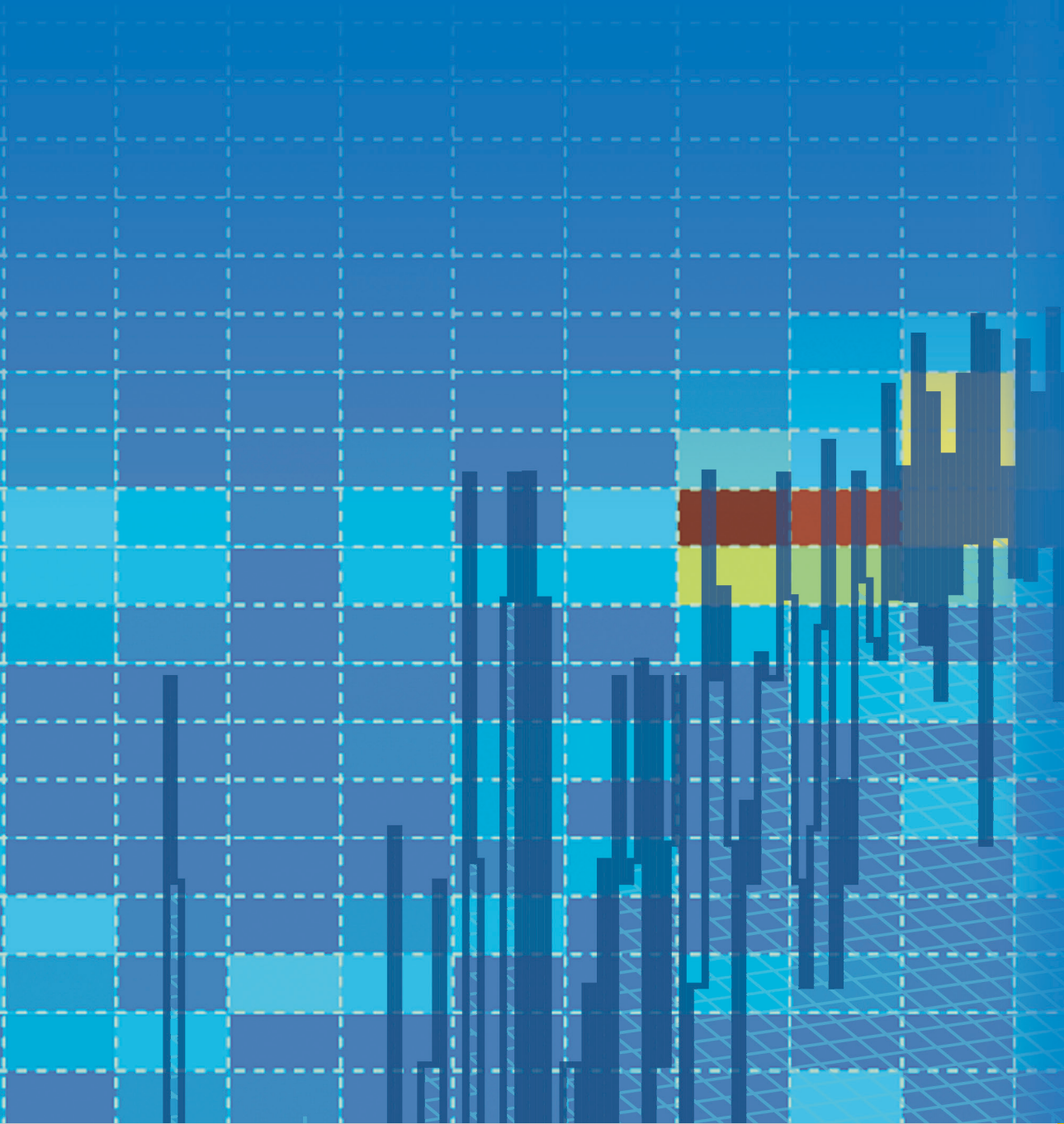
M. Warzecha (2014), 8, vii, 170 pp
ISBN: 978-3-89336-938-6

Band / Volume 208

**SGSreco - Radiologische Charakterisierung von Abfallfässern
durch Segmentierte γ -Scan Messungen**

T. H. Krings (2014), ix, 181, XI
ISBN: 978-3-89336-945-4

Weitere **Schriften des Verlags im Forschungszentrum Jülich** unter
<http://wwwzb1.fz-juelich.de/verlagextern1/index.asp>



Energie & Umwelt / Energy & Environment
Band / Volume 208
ISBN 978-3-89336-945-4

